



# Mesures de sections efficaces de fission induite par neutrons sur des actinides du cycle du thorium à n\_TOF.

Laure Ferrant

## ► To cite this version:

Laure Ferrant. Mesures de sections efficaces de fission induite par neutrons sur des actinides du cycle du thorium à n\_TOF.. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Paris Sud - Paris XI, 2005. Français. NNT: . tel-00011454

**HAL Id: tel-00011454**

**<https://theses.hal.science/tel-00011454>**

Submitted on 24 Jan 2006

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

07 septembre 2005

IPNO-T-05-05

**THESE**

présentée par

**Laure Ferrant**

pour obtenir

Le GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES

DE L'UNIVERSITE PARIS XI ORSAY

**Mesures de sections efficaces de fission**

**induite par neutrons**

**sur des actinides du cycle du thorium à n\_TOF.**

N° d'ordre : 7954

UNIVERSITE PARIS XI  
UFR SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THÈSE

présentée

pour obtenir

Le GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES DE  
L'UNIVERSITE PARIS XI ORSAY

PAR

Laure Ferrant

**Sujet : Mesures de sections efficaces de fission induite par  
neutrons sur des actinides du cycle du thorium à n\_TOF.**

Soutenue le 7 septembre 2005 devant la commission d'examen

B. Berthier

G. Barreau

F. Gunsing

N. Willis

R. Brissot

G. Rudolf

Directeur de thèse

Rapporteur

Rapporteur

Présidente

# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>1</b>
<b>Introduction</b>	<b>3</b>
<b>1 Contexte et motivations</b>	<b>7</b>
1.1 L'énergie . . . . .	7
1.2 L'énergie nucléaire aujourd'hui : systèmes actuels et déchets . . . . .	10
1.3 L'énergie nucléaire demain : systèmes innovants et gestion des déchets . . . . .	13
<b>2 Modèles, données nucléaires et neutronique</b>	<b>19</b>
2.1 Interactions neutron - noyaux . . . . .	19
2.2 Section efficace . . . . .	24
2.3 Bases de données . . . . .	30
2.4 Apports des mesures décrites dans cette thèse . . . . .	35
<b>3 Une nouvelle source de neutrons : n_TOF</b>	<b>57</b>
3.1 Produire des neutrons pour mesurer des sections efficaces . . . . .	57
3.2 Historique d'une collaboration : objectifs . . . . .	61
3.3 Description de l'installation . . . . .	62
3.4 Simulations, performances attendues . . . . .	70
3.5 Campagne de caractérisation expérimentale du faisceau de neutrons . . . . .	81
3.6 Conclusion : n_TOF, une nouvelle source de neutrons très performante . . . . .	86
<b>4 Dispositif de mesure pour la fission : description des détecteurs et cibles</b>	<b>89</b>
4.1 Méthode de mesure . . . . .	89
4.2 Choix du détecteur et des caractéristiques générales du dispositif de mesures . . .	93
4.3 Description détaillée des PPACs de l'IPNO . . . . .	99
4.4 Une disposition originale de détecteurs et de cibles . . . . .	105



4.5	Description détaillée des cibles . . . . .	109
4.6	Simulations préliminaires à la mesure . . . . .	119
<b>5</b>	<b>Mesures de sections efficaces de fission avec des PPACs</b>	<b>125</b>
5.1	Dispositif de mesure auprès de n_TOF . . . . .	125
5.2	Les différentes campagnes de mesures . . . . .	131
5.3	Traitement des données . . . . .	133
5.4	Analyse . . . . .	139
5.5	Mise en forme et exploitation des données . . . . .	155
5.6	Extraction des sections efficaces, efficacité, distribution angulaires . . . . .	161
<b>6</b>	<b>Résultats et discussion</b>	<b>167</b>
6.1	Validation de la méthode de mesure, flux de neutrons à n_TOF . . . . .	167
6.2	Rapport $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ . . . . .	171
6.3	Etat des résultats sur les actinides du cycle du thorium . . . . .	173
<b>7</b>	<b>Conclusion</b>	<b>181</b>
7.1	Faisceau de neutrons n_TOF : installation performante . . . . .	181
7.2	PPACs en sandwich et cibles ultra-mince évaporées : un bon système de mesures	182
7.3	Perspectives . . . . .	184
<b>A</b>	<b>Annexes</b>	<b>185</b>
A.1	Définitions . . . . .	185
A.2	Isotopes du cycle uranium et thorium . . . . .	185
A.3	Demi-vie et activité par mg des isotopes cités . . . . .	185
A.4	Schémas de désintégration . . . . .	192
A.5	Compositions isotopiques naturelles . . . . .	192
A.6	Epaisseurs de matière $\mu\text{m } \mu\text{g.cm}^{-2}$ . . . . .	192
A.7	Les unités du flux . . . . .	192

# Remerciements

Au cours de ma thèse, deux directeurs se sont succédés à la tête du laboratoire : Sydney Gallès et Dominique Guillemaud - Mueller. Je les remercie de m'avoir accueillie et de m'avoir permis de mener cette thèse dans les meilleures conditions possibles.

Malgré ses responsabilités, mon directeur de thèse, Bernard Berthier, a toujours gardé sa porte ouverte, et un temps précieux pour discuter, lire et corriger les chapitres de ce manuscrit. Je crois partager avec lui de très bons souvenirs de ces expériences au CERN, et suis certaine d'avoir beaucoup appris à son contact.

Du groupe PACS je remercie tous les membres, qui m'ont aidée et soutenue pendant toutes ces années. Malgré les difficultés, nous avons mené à bien ces mesures tous ensemble, Bernard, Claude (mille merci pour autant de relectures et de corrections, même en plein feu d'artifice), Laurent, Charles-Olivier, Victor, Sylvie, Sylvain et Fanny. Je pense aussi à ceux qui ne sont restés qu'un temps pour oeuvrer sur les PPACs : Christophe et Benjamin. Merci aussi aux autres membres du groupes, Monique et John. Co-thésards du début, Frank, Laurent, et de la fin, Adrien, Franco et Abdel, merci, bon courage et à la vôtre. C'est aussi grâce à Sergei que je sais compter en russe jusqu'à 106, et que cette thèse a abouti. Carlos y a aussi beaucoup contribué, nous serons toujours compagnons de route.

Merci à tous les groupes et services de l'IPN d'avoir permis la construction des détecteurs dans des conditions agréables : Jeannot et le service électronique, Jean-Pierre et les dessinateurs, les radiochimistes, les informaticiens et tous ceux de l'atelier, pour avoir toujours répondu à mes requêtes.

Faire partie de la collaboration n\_TOF a été difficile, intense et inoubliable, merci à tous ceux qui m'ont permis d'y évoluer au mieux et d'y trouver ma place. Les amitiés qui y sont nées sont précieuses. Merci à toutes les équipes du CERN de nous avoir aidés.

Ma gratitude se tourne vers mon jury : vers mes rapporteurs, Frank Gunsing (voir paragraphe précédent) et Gérard Barreau, pour leur lecture minutieuse et leurs commentaires, vers Nicole Willis, qui a accepté d'être présidente, Roger Brissot et Gérard Rudolf (finalement arrivé).

Pour une succession de hasards vitaux, merci aux AJTateurs, à Stéphanie Pitre, à messieurs

Dorval, Campana et Durand, à Amandine et ses collègues. C'est pour Marie, Alice, Emma, Camille et Mathilde que j'ai continué. Pour la thèse et ses parenthèses, merci à Pierre et les copains, à maman et à toute la famille.

# Introduction

Les présomptions actuelles sur une évolution du climat en corrélation avec celle des activités humaines s'inscrivent directement dans les études qui concernent l'énergie nécessaire, justement, à la poursuite de ces activités. Progresser partout dans le monde, pour longtemps, cela signifie des besoins en énergie croissants dans une société que le développement durable préoccupe.

Transporter, se chauffer, communiquer : la consommation mondiale en énergie primaire peut doubler ou tripler d'ici 2050. Mis à part le charbon, les sources d'énergie fossiles s'épuisent, et contribuent à augmenter la production de gaz à effet de serre.

Aussi, quels que soient les scénarios envisagés, l'utilisation de l'énergie nucléaire pour la production d'électricité dans une proportion supérieure à celle, modeste, qu'elle occupe aujourd'hui dans la consommation mondiale (environ 7% de la consommation totale), s'avère être une solution raisonnable. Des soucis d'efficacité, d'économie, de rentabilité, de sûreté, de préservation de l'environnement animent les études lancées autour des systèmes innovants de réacteurs. Des études de prospectives se font dans le cadre de GENERATION IV qui regroupe industriels et organismes publics de recherche à travers le monde.

En France, au sein du groupe de travail GEDEPEON, les contributions du CNRS, dont fait partie l'IPNO, ou du CEA se situent au carrefour de différents axes de recherche que soulève l'énergie nucléaire : des scénarios privilégiant production d'énergie et limitation des déchets ou de leur nocivité. Quelles filières ? Quelles combustibles ? Des idées ont émergé dans les années 90 autour des systèmes hybrides : les systèmes pilotés par accélérateurs (ADS) par exemple, utilisant une source extérieure de neutrons, dont les performances se démontrent d'abord par simulation.

Ces simulations font intervenir le très grand nombre de noyaux entrant dans la composition évolutive des systèmes, et leur probabilité de réaction avec les neutrons présents dans le cœur. Les probabilités de réaction, appelées sections efficaces de réaction, induites par neutrons en fonction de l'énergie de ces neutrons, sur différents noyaux, constituent les données de base sur lesquelles reposent les calculs d'évolution de cœur de réacteur. Elles permettent également de prévoir le comportement de n'importe quel système contenant des noyaux en interaction avec les neutrons.

Les bases de données de section efficace de réaction sur les noyaux sont utilisées dans les simulations de scénarios des physiciens, chimistes, expérimentateurs ou théoriciens. Expérimentales, elles sont connues avec des incertitudes, qui donnent une estimation de la qualité des résultats des mesures. Minimiser ces incertitudes demande parfois des prouesses techniques tant dans les mesures expérimentales que dans les analyses, et c'est un des objectifs de nouvelles mesures. Les études de sensibilité des paramètres de fonctionnement des systèmes simulés permettent de définir ces besoins en incertitudes.

Les bases de données mesurées expérimentalement sont compilées et associées à des traitements théoriques, basés sur des modèles : le résultat est centralisé dans les bases de données dites "évaluées". Les données foisonnent en particulier pour les isotopes engagés dans le cycle du combustible actuel : l'uranium, et suffisent en précision dans les domaines en énergie des calculs des neutroniciens sur les systèmes actuels. En revanche, celles qui concernent des domaines en énergie plus larges, sur des noyaux engagés dans des systèmes innovants, présentent des imprécisions ou des lacunes, se reflétant dans les désaccords entre bases de données.

Isoler un paramètre comme l'énergie et mesurer en fonction de celle-ci la probabilité d'une réaction sur un noyau entrant dans la composition d'un cœur de réacteur nécessite un dispositif complexe : des détecteurs adaptés à l'identification de la réaction, une source de neutrons intense, des échantillons de matière isotopiquement purs.

Toutes les conditions ont été réunies entre Juin 2000 et Octobre 2004 avec la mise en fonctionnement de la nouvelle source de neutrons n\_TOF auprès de l'accélérateur PS du CERN. Ainsi différents détecteurs ont été mis en oeuvre par les organismes de recherche internationaux. Ces instruments de mesures de précision allaient pour la première fois sur une telle expérience être couplés à un matériel d'acquisition de pointe : les Flash ADC. Le faisceau de neutrons pulsé, très intense et couvrant un domaine en énergie entre 0,7 eV et 1 GeV a été caractérisé puis exploité plusieurs mois par an.

Plusieurs mois de prise de données ont permis l'accumulation de données expérimentales de taux de réactions de capture et de fission, essentielles pour implémenter les bases de données disponibles actuellement. L'objectif final est d'obtenir une ensemble de données mises à disposition d'agences internationales comme la NEA, sous l'égide de l'AIEA qui, dans un effort d'homogénéisation des bibliothèques, permettent la communication entre les groupes et forment un lien cohérent entre producteurs et utilisateurs des données.

Le thorium, élément fertile existant dans la nature, est un combustible potentiel pour le nucléaire du futur. Dans le but de préciser les données associées à cet élément, l'IPN d'Orsay représenté par les groupes PACS et Radiochimie et le groupe de Physique de l'Université de Santiago de Compostella se sont engagés, au sein de la collaboration n\_TOF dans la mesure

précise des sections efficaces de fission induites par neutrons sur les actinides du cycle de cet élément. Ces mesures se font de manière relative aux noyaux d' $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$  considérés comme des références. Dans un premier temps on évaluera les performances du dispositif en comparant les données, obtenues grâce au flux simulé, avec les sections efficaces de fission de ces noyaux, ces dernières étant assez connues pour fournir ensuite une référence permettant de remonter au flux de neutrons de l'installation.

L'enjeu pour atteindre ce but a été de construire et de tester un système de détection constitué de détecteurs gazeux : les Chambres à Avalanches à Plaques Parallèles (PPAC) judicieusement assemblés pour satisfaire au cahier des charges d'une proposition d'expérience exigeante.

Nous décrirons la méthode originale suivie par notre équipe pour extraire, à partir des données brutes enregistrées avec les PPACs au cours des différentes campagnes, les données expérimentales. Nous verrons les apports de la méthode, les difficultés rencontrées et les améliorations envisagées.

Le **Chapitre 1 (Contexte et motivations)** montrera dans quelle mesure ce travail de thèse s'inscrit dans le contexte très général des études sur les systèmes innovants de production d'énergie nucléaire. Au delà de ce caractère applicatif, se dessinera également l'intérêt fondamental de ces mesures dans l'étude des noyaux, et des modèles qui les décrivent.

C'est pourquoi, dans le **Chapitre 2 (Modèles, données nucléaires et neutronique)**, après avoir rappelé les différentes réactions induites par les neutrons sur les noyaux, et abordé quelques aspects théoriques de la fission, nous décrirons les différentes bases de données de sections efficaces qui existent : leur format, le moyen d'y accéder... pour décrire finalement plus particulièrement celles des noyaux mesurés dans la thèse : certains actinides du cycle du thorium ou candidats à la transmutation.

Pour comparer les différentes sources de neutrons à la nouvelle installation **n\_TOF**, nous insisterons dans les premiers paragraphes du **Chapitre 3 (Une nouvelle source de neutrons : n\_TOF)** sur la description des simulations et mesures ayant donné lieu à la caractérisation de cette nouvelle source de spallation, autour de laquelle une collaboration est née.

Parmi les détecteurs envisageables pour satisfaire au cahier des charges de nos mesures, nous verrons pourquoi dans le **Chapitre 4 (Dispositif de mesure : description des détecteurs et des cibles)** nous avons choisi les Chambres à Avalanches sur Plaques Parallèles, appartenant à la famille des détecteurs gazeux. Nous verrons les avantages des PPACs et nous nous attarderons sur la construction de l'assemblage original de 10 de ces détecteurs pour mener nos mesures sur des cibles ultra-minces et étendues.

Après avoir énuméré leurs principales caractéristiques dans le chapitre précédent, nous précisons dans le **Chapitre 5 (Mesures de sections efficaces de fission avec des PPACs)** dans quelles conditions nos détecteurs ont été utilisés au cours des campagnes ayant eu lieu au CERN entre 2001 et 2004. A partir des nombreuses données recueillies, l'extraction des sections efficaces nécessite la prise en compte de nombreux paramètres qui seront mis en évidence.

Des mesures de section efficace ont pu être faites sur les noyaux suivants, relativement à l' $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$  considérés comme références :  $^{209}\text{Bi}$ ,  $^{nat}\text{Pb}$ ,  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{237}\text{Np}$ . L'apport des mesures à haute énergie ( $>20$  MeV) au traitement des données des noyaux standards comme  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$  sera également envisagé.

L'avancée de l'analyse sera présentée dans le **Chapitre 6 (Résultats et discussion)**, afin de montrer en quoi nos résultats peuvent satisfaire notre objectif d'apporter un complément aux bases de données de sections efficaces de fission induite par neutrons entre 0,7 eV et 1 GeV. Nous montrerons également les limites de la méthode, et en quoi les difficultés rencontrées peuvent être exploitées pour extraire de nouvelles informations. Améliorations possibles et perspectives feront l'objet de la conclusion.

# Chapitre 1

## Contexte et motivations : énergie et transmutation

### 1.1 L'énergie

Depuis quelques années, les scientifiques attirent l'attention de tous sur le problème de l'énergie : des séminaires [1, 2], des écoles [3, 4], des livres [5, 6, 7], qui, destinés à différents publics font état d'un réel problème. En 2004 le ministère de la recherche publie un rapport qui propose une réflexion prospective sur l'énergie au XXIème siècle [8].

En nous inspirant de ces documents, dressons un portrait général du contexte énergétique mondial. La production mondiale d'énergie primaire s'élève à 10 GTeP (La TeP ou Tonne Equivalent Pétrole correspond à environ 11 MWh) par an (c'est à dire environ 20 MWh/an et par habitant, moyenne qui ne reflète pas les inégalités).

Il est d'usage de classer les différentes sources d'énergie primaire comme suit : les énergies non renouvelables d'origine fossile (charbon, pétrole, gaz) ou nucléaire et les énergies renouvelables (solaire, éolien, biomasse, hydroélectrique, géothermie, hydrolienne). La consommation d'énergie dans le monde se répartit inégalement sur ces différentes sources : les non renouvelables couvrent 90% partagés en fossile (82%) et nucléaire (7%) tandis que les énergies renouvelables, essentiellement hydroélectrique et biomasse, ne couvrent que 10%. Cette répartition ne reflète pas la répartition dans chaque pays puisque chacun possède ses propres stratégies énergétiques. Ainsi, on peut se reporter au tableau 1.1 pour comparer la proportion d'énergie consommée selon les sources :

La production d'énergie est soumise aux réserves de consommables, dans le cas des sources non renouvelables, mais aussi au degré de technicité mis en oeuvre. Le nombre d'habitants et leur mode de consommation conditionne les réserves. Prévoir les besoins énergétiques revient



	fossile	nucléaire	renouvelable
Monde	82%	7%	11%
Europe	80%	14%	6%
France	58%	34%	8%

TAB. 1.1 – Répartition selon les sources, de la production en énergie primaire dans le Monde, en Europe, et en France [9].

à prévoir l'évolution de ces différents facteurs : techniques, économiques, politiques et sociaux. Tous les scénarios prévoient une augmentation de la production d'énergie mondiale en prenant en compte l'augmentation de la population d'ici 2050 (environ 9 milliards en 2050), et surtout l'arrivée prochaine des pays en développement dans la course à la croissance économique<sup>1</sup> variant entre 15 GTeP et 30 GTeP par an en 2050 [10].

Parmi les sources d'énergie non renouvelables, le pétrole et le gaz ne pourront plus assurer d'ici quelques dizaines d'années l'augmentation de la demande énergétique annoncée. On donne une idée dans le tableau 1.2 des années de réserve de ces sources d'énergie au taux de consommation actuel.

		Pétrole	Gaz	Charbon
Réserves	Prouvées	40	65	220
	Ultimes	135	230	1400

TAB. 1.2 – Réserves prouvées et ultimes (en années) au taux de consommation actuel des sources d'énergie fossiles, non renouvelables.

On doit trouver des moyens de produire de l'énergie de façon massive dans certains endroits, même si les sources locales et de moindre ampleur restent des pistes intéressantes à explorer pour des applications particulières.

La production d'énergie doit également, dans le contexte du développement durable, satisfaire aux critères de préservation de l'environnement, notamment les dispositions concernant les émissions de gaz à effet de serre responsables du réchauffement climatique [11, 12]. Le protocole de Kyoto de 1997 n'est qu'un premier pas (horizon 2012) vers une prise de conscience internationale de ce problème. La France devrait par exemple réduire d'un facteur 4 ses émissions de CO<sub>2</sub> pour stabiliser l'augmentation de température à 2°C, tandis que le protocole de Kyoto ne propose qu'un retour en 2010 au taux d'émission des années 1990.

<sup>1</sup>50% de l'énergie est actuellement consommée par seulement 20% de la population.

Il apparaît clairement que la consommation d'énergie fossile, très émettrice de ces gaz, doit être réduite, et donc, la nécessité de développer en parallèle divers sources d'énergie, tirant parti de leur complémentarité. Dans un souci d'économie et d'écologie on cherchera aussi à favoriser des comportements adéquats tant dans la consommation que dans l'utilisation des techniques de production. La répartition des sources d'énergie va alors sûrement se modifier. Le nucléaire est aujourd'hui une source potentielle de production massive d'énergie, qui pourrait combler une grande partie de manque dû à la réduction inévitable de la consommation de combustibles fossiles.

Certains scénarios envisagent une production d'énergie nucléaire dont la proportion par rapport à l'énergie totale consommée pourrait passer à 25%. Ce qui conduirait à multiplier par 10 la puissance nucléaire installée. Les réserves en "combustible" nucléaire, comme celui utilisé actuellement (l'uranium) risquent alors également de s'amenuiser, mais nous allons voir que des solutions sont envisageables, au prix de la recherche sur le développement de systèmes innovants.

La France se distingue actuellement par la part importante octroyée au nucléaire dans sa production d'électricité (75% contre 17% dans le monde), ce qui nécessite une technologie de pointe en constante évolution, afin de satisfaire les contraintes de disponibilité, de sûreté et de propreté, exigences sévères des systèmes complexes de production d'énergie nucléaire. Peut-elle être un exemple pour le monde ? Quelles sont les technologies ? Y a-t-il assez de réserves ? Quelles solutions possibles ? C'est ce à quoi nous allons essayer de répondre dans les sections suivantes.

Nous allons, dans ce chapitre, montrer dans quel cadre les mesures de sections efficaces de fission induites par neutron permettent d'apporter une contribution aux études des systèmes innovants de production d'énergie par fission, notamment ceux qui envisagent de passer d'un combustible actuel d'uranium enrichi au combustible thorium, dont le cycle doit être étudié. A cela s'ajoutent des considérations sur l'incinération par fission des actinides mineurs, issus des réacteurs actuels ou des réacteurs surgénérateurs basés sur le cycle thorium.

Le développement expérimental d'un système de détection performant, la mise à profit des nouvelles technologies (cibles, acquisition...), et l'amélioration constante des systèmes de transmission et de traitement des données permettent de mener à bien des expériences toujours plus précises et fiables, dont les résultats alimentent les simulations de systèmes, qu'ils soient à vocation applicative, ou plus fondamentale. Nous précisons donc ici les champs de recherche dans lesquelles nos mesures s'intègrent.

## 1.2 L'énergie nucléaire aujourd'hui : systèmes actuels et déchets

### 1.2.1 Principes

Actuellement, l'énergie nucléaire est basée sur la fission de l'isotope fissile de l'uranium naturel : l' $^{235}\text{U}$  présent dans l'uranium naturel à seulement 0,7%, pour 99,3% d' $^{238}\text{U}$ , le combustible est le plus souvent enrichi jusqu'à 4% en  $^{235}\text{U}$ . Cette fission s'accompagne de dégagement d'énergie (200 MeV/fission), qui est alors transformée en chaleur évacuée du cœur par un fluide caloporteur. Comme la fission s'accompagne de l'émission de neutrons, eux-mêmes capables de produire des fissions, il y a apparition d'une réaction en chaîne. La criticité est un des paramètres qui permettent de décrire un système : si un neutron de fission induit exactement une fission, le milieu est critique, en dessous de ce nombre, le système est sous critique et au dessus il est surcritique et peut diverger.

Aux basses énergies (<quelques eV), la fission de l' $^{235}\text{U}$  est favorisée par rapport aux absorptions sur l' $^{238}\text{U}$ , ce qui permet d'atteindre la criticité. C'est pourquoi les réacteurs à uranium enrichi sont à neutrons lents, ou thermiques (spectre maxwellien autour de 25 meV). C'est pourquoi les neutrons de fission, émis aux alentours de 2 MeV d'énergie cinétique sont ralentis par diffusions multiples sur les protons de l'eau. L'eau sert donc à la fois de caloporteur et de modérateur. Selon l'énergie des neutrons qui induisent les fissions dans le coeur du réacteur on parlera d'une centrale à spectre d'énergie rapide (de quelques centaines de keV) ou thermique (moins d'1 eV).

### 1.2.2 Technologies actuelles

Les filières actuelles fonctionnent principalement avec des neutrons thermiques, sur un combustible d'uranium enrichi. Le type de réacteur utilisé en France est le REP (Réacteur Eau Pressurisée)<sup>2</sup> dont le rendement thermique est de 33 %. C'est pourquoi on distingue les watts électriques (notés  $W_e$ ) et les watts thermiques. On peut toutefois mentionner les réacteurs à eau bouillante ou REB (= BWR) et les réacteurs du type CANDU, réacteurs à eau lourde qui utilisent de l'uranium naturel. Les réacteurs HTR = Haute température refroidis au gaz (hélium) et les RNR (Réacteurs à Neutrons Rapides) ne sont pas restés en fonctionnement longtemps. Bien qu'exploitant une technologie intéressante, les RNR surgénérateurs à spectre rapide ont été arrêtés en Europe après Superphénix en 98. Refroidis au sodium ils présentaient en effet des conditions d'exploitation difficiles.

L'EPR European Pressurized Water Reactor représente la troisième génération de réacteurs à eau légère.

---

<sup>2</sup>en anglais PWR Pressurised Water Reactor= LWR réacteurs à eau légère.

### 1.2.3 Consommation des ressources en uranium

L'énergie libérée par un REP de 1 GW<sub>e</sub> (10<sup>9</sup> W<sub>e</sub>) pendant 1 an correspond à la combustion d'environ une tonne de matière fissile. Pour atteindre ce taux de combustion, les REP utilisent environ 27 tonnes de combustible enrichi par an, qui eux-mêmes ont nécessité l'utilisation de 200 tonnes d'uranium naturel. Le taux d'utilisation du minerai est donc seulement de l'ordre de 0,5%.

Au rythme actuel, les réserves prouvées d'uranium naturel permettent de produire de l'énergie pendant environ 40 ans (tableau 1.3), et ne peuvent pas assurer un déploiement massif du nucléaire. Les réserves ultimes sont mal connues et sont estimées entre 15 et 25 millions de tonnes. Dans ce cas, on pourrait développer d'un facteur 10 le nucléaire pendant 50 ans seulement.

		Nucléaire fis- sion technologie actuelle	Nucléaire fission si surgénération
Réserves	Prouvées	70	3000
	Ultimes	280	14000

TAB. 1.3 – Réserves d'uranium prouvées et ultimes (en années) au taux de consommation actuel, selon la technologie utilisée.

### 1.2.4 Pourquoi déployer le nucléaire ?

L'énergie nucléaire permet, à moindre coût, de produire de l'énergie en grande quantité, en ayant un impact plus faible sur l'atmosphère que les autres sources, notamment en terme de rejet de gaz à effet de serre. Mentionnons l'exemple des 40 Mtonnes de carbone (150 Mtonnes de CO<sub>2</sub>) rejetés en moins en 1985 par rapport à 1980 suite à l'installation des centrales nucléaires en France pour la production d'électricité [12]. Seuls le transport et la construction sont gazogènes. C'est une source d'énergie fiable (peu d'aléas), transportable, dont le combustible primaire - l'uranium - est assez abondant. Produisant un faible volume de déchets, elle peut éventuellement offrir une complémentarité avec la production d'hydrogène par exemple.

### 1.2.5 Ce qui doit être amélioré

Tout en gardant en tête les améliorations concernant les contraintes de sûreté (la probabilité de fusion du cœur avec rejet radioactif devant être minimisé), la prévention des accidents (explosion, attaque, séisme), la robustesse aux évolutions socioculturelle, la capacité à éviter

les accidents graves et l'exclusion de la prolifération des armes nucléaires, les acteurs du nucléaire, soucieux également d'avoir une source d'énergie compétitive et rentable [13], s'appuient actuellement sur des recherches portant sur :

- une meilleure gestion des ressources
- une gestion des déchets améliorée, comprise et acceptée par le plus grand nombre.

### 1.2.6 Quels déchets ?

Les déchets de haute et très haute activité ne couvrent qu'une faible proportion de la masse totale de déchets. Ainsi, en France, les combustibles usés des centrales REP actuelles sont composés en moyenne de :

- uranium 235 (1%)
- uranium 238 (95%)
- Produit de Fission à Vie Longue et Courte (3%)
- actinides mineurs (0,1%)
- plutonium (1%)

Les Produits de Fission à Vie Moyenne sont émetteurs  $\beta$  et sont qualifiés de très faible activité, parmi eux on trouve par exemple, le  $^{90}\text{Sr}$ , le  $^{137}\text{Cs}$ .

Les Produits de Fission à Vie Longue ont des durées de vies en émission  $\beta$  de quelques années à plusieurs millions d'années (exemples :  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{90}\text{Zr}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{107}\text{Pd}$ ,  $^{126}\text{Sn}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ).

Parmi les actinides majeurs ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ), le  $^{239}\text{Pu}$  est un déchet de haute toxicité.

Les actinides mineurs dominent la radiotoxicité à long terme, ils sont radioactifs par émission  $\alpha$  et ont des durées de vie longues (exemples : le  $^{237}\text{Np}$  ( $2,14 \cdot 10^6$  ans voir A.3),  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{243}\text{Am}$ ).

La notion de déchets est délicate, ainsi le plutonium est considéré comme un déchet aux USA et en Suède, ailleurs (France, Allemagne, Japon) il est recyclé, car c'est un matériau fissile, dans les réacteurs à eau légère REP alimentés au MOX (Mixed Oxyde), c'est aussi le matériau fissile qui peut être utilisé dans les RNR surgénérateurs.

### 1.2.7 De la nécessité des recherches

Les réserves ultimes estimées actuellement en minerai d'uranium devraient s'épuiser d'ici 300 ans au taux de consommation actuel, cette échéance se réduirait fortement dans le cas d'une augmentation importante de la production nucléaire. En vue d'optimiser l'utilisation du combustible, des solutions nouvelles ont été imaginées, pour mettre en place de nouvelles techniques permettant d'assurer un nucléaire durable.

En cherchant à supprimer, ou tout au moins améliorer le problème des déchets (diminution du volume créé, amélioration du retraitement, destruction), l'impact moindre du nucléaire sur

l'environnement faciliterait certainement son acceptation, le rendant une des sources d'énergie de masse du futur.

Notre travail s'inscrit dans le cadre de ces recherches liées aux études de techniques innovantes de production d'énergie nucléaire. Si la fusion est à l'étude, l'exploitation des résultats associés aux recherches actuelles (ITER) n'est envisageable qu'en 2050, et la production d'énergie par un réacteur industriel pas avant la fin du XXI<sup>ème</sup> siècle. Pour la production par fission, en revanche, nous venons de décrire les techniques actuelles bien abouties, et nous allons dans la suite énoncer les concepts retenus dans le cadre du forum Generation IV, pour des recherches auxquelles nos mesures vont tenter de contribuer.

## 1.3 L'énergie nucléaire demain : systèmes innovants et gestion des déchets

### 1.3.1 Produire de l'énergie durablement : perspectives et contraintes

Les centrales actuelles utilisent moins de 1% du minerai d'uranium ; par contre un nucléaire intensif devrait avoir recours à la surgénération, afin d'optimiser l'utilisation des ressources et éviter l'épuisement en uranium.

La surgénération consiste à exploiter l'isotope fertile du minerai afin de produire du matériau fissile. Ainsi, dans le cas de l'uranium, l'élément fertile  $^{238}\text{U}$  permet d'obtenir du  $^{239}\text{Pu}$  fissile après une capture neutronique et 2 désintégrations  $\beta$ , on parlera alors de combustible U/Pu. Le minerai est ainsi exploité à 100 %, ce qui étend à plusieurs milliers d'années les réserves (voir le tableau 1.2). Ce système n'est pas accessible avec la technologie des réacteurs actuels utilisant des neutrons de basse énergie, car le nombre de neutrons disponibles pour régénérer l'isotope fissile n'est pas suffisant. Un spectre rapide est nécessaire et nécessite donc un liquide de refroidissement différent de l'eau tels le sodium, le plomb ou le gaz. [3 concepts] Pour commencer à faire des RNR U/Pu refroidis au sodium, il est nécessaire d'utiliser le Pu produit par un REP pendant 50 ans.

Le deuxième actinide fertile naturel est le  $^{232}\text{Th}$  qui après capture, et désintégrations successives, mène à l' $^{233}\text{U}$ , qui est fissile. C'est pourquoi on envisage un nouveau type de combustible : le thorium. Nous consacrons le paragraphe 1.3.3 à ce combustible.

La surgénération est possible avec ce matériau pour des neutrons de basse et de haute énergie, mais le *bilan neutronique* est moins favorable que pour le spectre U/Pu rapide [14].

Une certaine quantité de matière fissile par rapport à la matière fertile est nécessaire au démarrage d'un réacteur régénérateur, dont le combustible nécessite, en outre, d'être retraité pour évacuer les poisons neutroniques que constituent les Produits de Fission ou le  $^{233}\text{Pa}$ . Cette

*concentration* en matière fissile conditionne la manière de faire la transition vers cette nouvelle technologie, et les paramètres de son évolution dépendent des caractéristiques neutroniques des isotopes présents.

### 1.3.2 Détruire les déchets

Les déchets de Haute Activité sont les plus préoccupants. Le Pu est une matière fissile, qui peut donc, comme nous venons de le voir être utilisé dans les RNR. Dans le cadre de la loi Bataille [15], différents axes sont à l'étude pour la gestion des autres déchets, notamment les produits de fission et les actinides mineurs, qui en attendant les décisions prises en 2006, sont encore vitrifiés et conditionnés dans des conteneurs en acier inoxydable. Une partie se retrouve également dans les pertes au retraitement des combustibles usés. Les 3 axes : séparation poussée et transmutation, stockage géologique profond, et entreposage en surface constituent le cadre de ces recherches [16].

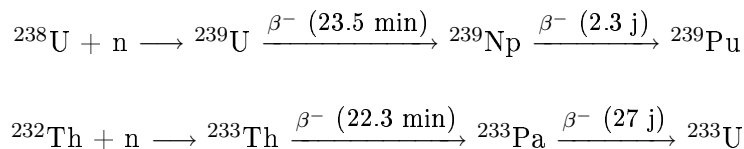
Nos mesures s'intègrent directement dans le premier axe, où est envisagée la possibilité d'incinérer les déchets existants : les actinides mineurs. L'idée est d'exploiter les réactions nucléaires comme capture et fission induites par les neutrons, qui permettent respectivement d'incinérer des noyaux lourds et de transmuter les produits de fission en noyaux stables ou, plus souvent, en noyaux de durée de vie plus courte. Pour les incinérer on pourra envisager de les recycler dans les RNR, ou bien de les transmuter dans des réacteurs dédiés, assistés par accélérateur, encore appelés ADS (Accelerator Driven System) ou hybrides.

Dans les deux cas, la transmutation de ces noyaux, placés en quantités non négligeables dans le cœur, modifie ses qualités neutroniques et les paramètres de sûreté.

### 1.3.3 Limiter les déchets : le combustible thorium

Dans le cas de la régénération, les réserves prouvées d'uranium et de thorium (encore plus abondant) permettent de produire de l'énergie pendant plusieurs milliers d'années, puisque la quasi totalité du minerai est utilisée (1 tonne/GWe.an).

Pour le combustible thorium, on génère l'isotope fissile  $^{233}\text{U}$ , produit par une chaîne de réactions similaire à celle qui produit le  $^{239}\text{Pu}$  dans le combustible uranium, c'est à dire, si l'on place les deux chaînes pour les comparer :



La surgénération est possible avec un combustible  $^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$  à la fois à haute énergie et également en spectre thermique ce qui est impossible en cycle U/Pu. Mais le bilan neutronique est très tendu. Les produits de fission qui capturent plus les neutrons à basse énergie doivent être évacués, ce qui entraîne la nécessité de retraiter le combustible souvent : un combustible liquide (sels fondus) peut être retraité en ligne dans des temps raisonnables. Il sert alors dans ce cas également de caloporteur. C'est le concept MSR, Molten Salt Reactor, dont le combustible peut être un mélange de  $^{232}\text{Th}$  et d' $^{233}\text{U}$ . Dans les concepts à spectre thermique, les neutrons sont modérés par du graphite.

Le passage aux réacteurs surgénérateurs à sels fondus au thorium nécessite un apport initial d'1 à 2 tonnes d' $^{233}\text{U}$  par GWe qu'il faut produire de différentes manières, soit dans les réacteurs actuels (MOX, Th/Pu) soit dans des réacteurs rapides [17].

La radiotoxicité induite, si tous les actinides mineurs sont retraités dans le cœur au même titre que le matériau fissile, dépend des pertes au retraitement. Mais le cycle du thorium présente l'avantage de produire globalement moins de ces noyaux lourds, son numéro atomique le situant plus loin des actinides mineurs sur le tableau des nucléides que les isotopes de l'uranium. La radiotoxicité à long terme induite par le cycle du thorium est dominée par les isotopes 232 et 233 de l'uranium, ainsi que par le protactinium-231. La filière thorium produirait donc moins de déchets à vie longue.

Il faut noter que la présence d' $^{232}\text{U}$  est responsable d'une radioactivité  $\gamma$ , et nécessite d'avoir recours à la télémanipulation pour toutes les étapes de retraitement/fabrication de combustible solide, à ce titre, il représente un frein à la prolifération.

Et même si le parc nucléaire mondial reste cantonné dans la filière actuelle, le combustible thorium peut être envisagé (Th/U/Pu) pour dégrader le Pu, et diluer l' $^{233}\text{U}$  dans une matrice d'uranium naturel ( $^{238}\text{U}$ ).

#### 1.3.4 Les concepts retenus pour la production d'énergie

Alors que sont à peine terminées les discussions qui concernent les réacteurs de 3<sup>ème</sup> génération (EPR), le Forum Generation IV est à l'origine de plusieurs programmes de recherche concernant les options innovantes de production d'énergie nucléaire. En tout 6 concepts dédiés à la production d'énergie ont été retenus et pris en charge par différents pays dans le but d'évaluer leur faisabilité :

- VHTR Very High Temperature Reactor pour produire de l'hydrogène (Rapide)
- Surgénérateur refroidi au gaz (Rapide) (U/Pu)
- SFR Sodium-cooled Fast Reactor Surgénérateur refroidi au sodium (Rapide) (U/Pu)
- LFR Lead-cooled Fast reactor Surgénérateur refroidi au plomb (Rapide) (U/Pu)
- MSR Molten Salt Reactor (Thermique) (Th/U)



- SCWCR Super Critical Water-cooled Reactor surcritique (Rapide)

En France, sont regroupés autour de ces recherches les différents opérateurs de l'énergie (EdF), les organismes comme le CEA, l'ADEME, le CNRS collaborant avec les universités dans le cadre de programmes de recherches.

Dans le contexte de la production d'énergie et de l'aval du cycle électronucléaire que nous venons de décrire, le CNRS est particulièrement impliqué en France dans les études qui concernent la filière thorium en réacteurs à sels fondus, les réacteurs hybrides, la gestion et la destruction des déchets. Pour cela différents programmes ont été mis en place, et menés à bien par des groupes de recherche issus de collaboration avec d'autres organismes. Le Groupe Gedepeon (CNRS, CEA, EdF, Areva) a permis de suivre l'évolution des études concernant ces projets et de partager nos mesures. L'Europe, à travers le programme PDS-X-ADS du plan transmutation et incinération, soutient également ces travaux. Les motivations communes d'aboutir dans ces projets ont fait se rencontrer les différents acteurs de la recherche dans les domaines tels que :

- résistance des matériaux de structure
- chimie de séparation
- données nucléaires
- compréhension et modélisation des processus (spallation, fission, capture...)
- technologie des accélérateurs
- études de systèmes

### 1.3.5 Des concepts à la mise en oeuvre

Dans tous ces domaines, les recherches sont le fruit de la collaboration étroite entre 2 techniques : les simulations et les mesures. Les mesures expérimentales couplées aux simulations sont les outils utilisés pour démontrer ou infirmer la faisabilité des concepts selon les critères technique, économique, écologique, dont l'importance est décidée ensuite. Les simulations utilisent des codes de calcul (MCNP, ...) dans lesquels sont simulés le transport des neutrons, les interactions avec les noyaux. En prévoyant l'évolution des systèmes au cours du temps, elles permettent d'étudier différents scénarios en faisant varier différents paramètres (géométries, compositions,...) en vue de quantifier et de comparer les capacités de déploiement des diverses filières envisageables, ainsi que les rejets radiotoxiques qu'elles génèrent.

Le calcul de la quantité de matière fissile surgénérée par exemple dans un système comme les surgénérateurs décrits plus haut requiert des simulations très détaillées des réacteurs nucléaires des différents filières, or nous avons vu que la matière fissile était générée par capture de neutron. Aussi, des données sont intégrées dans les codes sous forme de liste de données quantifiant par exemple les sections efficaces de capture, c'est à dire les probabilités des noyaux de capturer un

neutron en fonction de leur énergie. De même, nous avons vu que les produits de fission sont issus de la fission des noyaux fissiles contenus dans le coeur des réacteurs, aussi, dans les codes de calculs sont intégrés les quantités rendant compte des probabilités de fission des noyaux : les sections efficaces de fission.

Pour les filières actuelles, c'est à dire utilisant l'uranium, plusieurs codes ont pu être validés pour des énergies inférieures à 20 MeV, cependant plusieurs campagnes de mesures ont permis d'améliorer les données qui manquaient de précision pour les faire évoluer : mesures de capture radiative sur les isotopes de l'américium à l'ILL [18] ou mesures de section efficace de fission par réaction de transfert [19].

Dans le cas des options innovantes comme celles que nous venons de décrire (cycle thorium, ADS...), les noyaux impliqués sont différents, les énergies également, et les codes de calculs se doivent d'être améliorés par de nouvelles campagnes de mesure comme celle à laquelle participe notre dispositif pour la fission de certains actinides du cycle du thorium et l'incinération des actinides mineurs. L'étude des capacités d'incinération des systèmes hybrides nécessite la mise au point d'outils de simulation spécifique, utilisant des jeux de données capables de reproduire les résultats d'expériences, dont l'objet porte par exemple sur la cible de spallation (expérience MEGAPIE) ou sur le fonctionnement du coeur de réacteur (expérience MUSE).

Les techniques de mesures elles-mêmes doivent être améliorées (flux importants, flux instantané importants pour l'étude des noyaux radioactifs) mesures de flux, références pour les autres mesures.

Nous venons d'insister sur le caractère applicatif du contexte de nos mesures, justifiant un programme dans le cadre de l'aval du cycle, et une certaine cohérence avec les autres membres de notre groupe. Cependant, on peut également attendre des mesures expérimentales de fournir des informations sur les noyaux sur lesquelles elles s'effectuent, ainsi que sur les interactions qu'elles quantifient.

Pour fixer les idées sur les connaissances théoriques et les questions concernant les mesures que nous avons menées à bien, nous consacrons le début du chapitre suivant à une vue générale des considérations actuelles sur les particules en jeu : le neutron, les noyaux, et leurs interactions, notamment la fission.

Nous développerons dans la suite du prochain chapitre la notion de section efficace, qui est une manière de quantifier ces caractéristiques neutroniques, et dont la mesure est au coeur de ce travail. Et nous aborderons alors leur relation avec quelques paramètres de réacteurs entrant dans les calculs de neutronique. Nous avons mentionné par exemple le bilan neutronique, la concentration en matière fissile.

Nous verrons ensuite en détail, les noyaux et les réactions pour lesquels nous souhaitons

améliorer les données par notre travail, en commençant par présenter ces données et leur disponibilité dans la communauté des utilisateurs et fournisseurs, puis en encadrant les domaines d'application de nos propre mesures (noyaux, énergies...).

## Chapitre 2

# Modèles, données nucléaires et neutronique

L'objectif de ce chapitre est de montrer les liens qui existent entre les sections efficaces, quantification des probabilités d'apparition des réactions, et la phénoménologie des interactions, pour donner un sens à nos mesures.

### 2.1 Interactions neutron - noyaux

Nous proposons une brève description des réactions que des neutrons, d'énergie variant dans un domaine très large (de 0,1 eV à 1 GeV), peuvent induire sur les noyaux.

#### 2.1.1 Le neutron

Le neutron est une particule fondamentale dont la masse est légèrement supérieure à celle du proton et dont la charge électrique est nulle. Lié dans un noyau, le neutron est stable. Libre, il se désintègre par radioactivité  $\beta^-$  en un proton ( $T_{1/2} = 11$  mn). Cependant dans un réacteur les neutrons libres sont considérés comme stables, car il s'écoule en moyenne moins d'1 ms entre leur naissance et leur disparition. Neutre, il n'a pas à vaincre la barrière coulombienne, et des réactions nucléaires sont possibles même pour des énergies très faibles et un moment orbital nul. Les phénomènes d'interaction entre neutron et noyaux sont régis par les lois de la mécanique quantique, nous donnons une idée des longueurs d'onde de De Broglie associée aux neutrons considérés comme une onde dans les différents domaines d'énergie dans le tableau 2.1. A la lumière de ces ordres de grandeur selon le domaine d'énergie, différents modèles ont été proposés pour les interactions des neutrons avec les noyaux. Commençons par énumérer les interactions rencontrées.

Energie	Ordre de grandeur de la longueur d'onde
neutron thermique $\approx 25$ meV	dimensions de l'atome
neutron rapide $E \approx 1$ MeV	dimensions du noyau
neutron haute énergie $E > 10$ MeV	dimensions du nucléon

TAB. 2.1 – Ordres de grandeur des longueurs d'onde de De Broglie associés aux neutrons de différentes énergies.

### 2.1.2 Interactions des neutrons avec les noyaux

L'occurrence de ces réactions dépend des caractéristiques du projectile (énergie, spin...) et du noyau cible (élément, isotope...).

#### • Diffusion élastique potentielle

Cette réaction, au cours de laquelle le neutron est diffusé par la barrière de potentiel du noyau dans lequel il ne pénètre pas, se rencontre à toutes les énergies. Plus les noyaux du milieu sont légers, plus le neutron y est ralenti par ce phénomène. Cette réaction peut se traiter par des considérations de cinématique pure.

#### • Absorption

Pour modéliser les interactions intervenant jusqu'à quelques MeV, le modèle du noyau composé a été introduit. Imaginons qu'un neutron de quelques MeV interagisse avec un noyau : pour traverser ce noyau de quelques angstrom de diamètre sans interaction, il va mettre  $10^{-22}$  s, c'est ce temps qui est caractéristique de la formation rapide du noyau composé. Dans le milieu du noyau, le neutron apporte une certaine énergie d'excitation : son énergie cinétique, et une énergie de liaison caractéristique du noyau ainsi composé (de l'ordre de 5 MeV pour les noyaux lourds). La durée de vie du noyau composé excité, de l'ordre de  $10^{-15}$ - $10^{-17}$  s, est bien plus longue que le temps de formation, et les voies de désexcitation possibles sont alors les suivantes :

- diffusion élastique résonante : un neutron est réémis en emportant l'énergie excédentaire.
- diffusion inélastique : le noyau excité retombe dans un niveau un peu moins excité, ce qui est possible si le neutron possède une énergie comprise entre ce dernier niveau et le niveau fondamental.
- capture radiative (n,gamma) : il y a émission d'un ou plusieurs gamma dans les étapes de désexcitation du noyau composé.
- fission (n,f) : les noyaux cible lourds ( $Z > 70$ ) permettent cette réaction. Le noyau déformé

se scinde en deux noyaux plus légers, car l'énergie d'excitation apportée par le neutron, parfois même sans énergie cinétique, est supérieure à un seuil (barrière de fission) (par exemple, les noyaux d' $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  ou de  $^{239}\text{Pu}$  ayant un nombre impair de neutrons sont fissiles).

- émission de particules chargées (n,p), (n, $\alpha$ ) : le noyau voit s'évaporer quelques un de ses nucléons. Souvent à seuil à part quelques exceptions.
- émission plusieurs neutrons (n,xn) : si l'énergie cinétique du neutron incident est supérieure à l'énergie de séparation des derniers neutrons du noyau cible, plusieurs neutrons peuvent être émis.
- multifragmentation
- spallation au delà de 100 MeV : le noyau se décompose "instantanément" en résidus de spallation, et émet de nombreux neutrons.

Il convient de noter que certaines voies ne sont pas ouvertes tant que le neutron n'atteint pas une certaine énergie. Selon la masse et la répartition en nucléons du noyau, selon le spin-parité de l'état dans lequel le neutron met le noyau composé, la probabilité de réaction que nous venons de citer sera différente.

Si le neutron apporte juste ce qu'il faut d'énergie cinétique pour former un noyau composé dans un état donné : énergie, spin, parité, durée de vie donnée, alors la formation du noyau composé dans cet état sera favorable, il aura une grande probabilité d'être formé et les voies de sortie précédentes seront observées plus souvent pour ces énergies, que pour d'autres. Nous verrons alors sur la courbe représentant la probabilité (ou section efficace) de réaction en fonction de l'énergie, apparaître des résonances, à certaines énergies  $E_0$  avec une largeur  $\Gamma$  et espacées d'un intervalle  $D$ . Pour des neutrons assez lents, de longueur d'onde typique de la taille du noyau, la largeur des niveaux excités du noyau composé est de l'ordre de l'eV, soit une constante de temps de l'ordre de  $10^{-15}$  s. L'énergie d'excitation du neutron a le temps de se distribuer parmi tous les nucléons de la configuration composée. L'énergie  $E_0$  est caractéristique de l'état d'énergie dans lequel cette redistribution a permis de mettre le noyau, la largeur  $\Gamma$  caractérise la largeur de l'état quantique du noyau composé, et  $D$  représente la distance entre ces niveaux.

A partir d'une dizaine de MeV, le neutron réagit directement avec les nucléons dont les dimensions sont comparable à sa longueur d'onde associée, un noyau composé n'a pas le temps de se former, mais il peut y avoir évaporation, multifragmentation, ou spallation.

### 2.1.3 Plus de détails sur la fission des noyaux par les neutrons

#### • Histoire et exploitation

En étudiant les expériences de Fermi bombardant de l'uranium avec des neutrons, Hahn et Strassman découvrent la formation de nombreux éléments plus légers, comme le baryum, qu'ils identifient avec la participation de Meitner. C'est semble-t-il Meitner et Frish qui expliquent le phénomène, qu'ils appellent "fission", en imaginant une goutte liquide se scindant en 2 plus petites. Puis Bohr et Wheeler proposent une description théorique du processus. Halban, Joliot, Kowarski, devancent Fermi-Szilard dans la mise en évidence de l'émission de neutrons secondaires.

La fission spontanée de certains noyaux lourds, d'ailleurs responsable de la limitation dans la synthèse d'éléments, est mise en évidence un an plus tard par Petrzhak et Flerov.

La fission peut être induite par des neutrons, des protons, ou même des ions lourds, des photons...Et comme elle s'accompagne de l'émission de neutrons, elle peut s'auto-entretenir : c'est la réaction en chaîne dont l'évolution dépend de la taille du milieu : la notion de masse critique est introduite par Perrin.

L'énergie libérée, récupérée sous forme de chaleur, est exploitée dans les réacteurs nucléaires.

#### • Observations expérimentales, description du processus

La fission est énergétiquement possible dans les noyaux lourds (autour de  $A=230$ ), car l'énergie de liaison par nucléon est plus faible - de près d'1 MeV - que celle des noyaux moins lourds : aussi un noyau lourd se scindant en 2 noyaux moyens va libérer une énergie d'environ 200 MeV, disponible pour éjecter les noyaux formés.

Les Produits de Fission<sup>1</sup> emportent à eux deux environ 160-170 MeV en énergie cinétique, sur les 200 MeV libérés par la fission, qu'ils se partagent, dans le rapport inverse de leurs masses. La conservation de la quantité de mouvement totale, conduit à l'émission à 180° de chacun de fragments, jusqu'à une certaines énergies du neutron incident, à partir de laquelle on ne peut plus négliger le transfert de moment.

A basse énergie, il n'y a pas de direction privilégiée pour l'émission des PF, mais quand s'ouvrent les voies de fission de première et de deuxième chance, à haute énergie, l'émission devient anisotrope.

Selon le noyau fissionnant et l'énergie du neutron, la forme de la distribution en masse des fragments est différente [20]. A basse énergie, la distribution présente 2 bosses piquées sur des nombres magiques, qui se rapprochent à mesure que l'énergie augmente : on dit que la fission devient symétrique.

---

<sup>1</sup>notés PF ou FF dans la suite

Les produits de fission présentent un excès de neutrons. Aussi la fission s'accompagne-t-elle d'une émission de neutrons prompts, ou retardés s'ils apparaissent après désintégration par émission  $\beta$ . Un spectre maxwellien d'énergies centré autour de 2 MeV décrit la distribution en énergie de ces neutrons.

Des particules  $\alpha$  et des  $\gamma$  sont également émis. Il se peut que parfois 3 noyaux soient éjectés, c'est la fission ternaire, mais cette réaction est peu probable.

- **Sur la modélisation du phénomène : questions ouvertes**

Modéliser le processus de fission est une tâche difficile et extrêmement intéressante, car elle permet de comprendre la structure et le comportement de la matière nucléaire.

Dans le modèle de la goutte liquide, pour déformer le noyau, il faut apporter une certaine énergie pour vaincre les forces nucléaires (terme de surface dans le défaut de masse). En revanche, la répulsion coulombienne entre protons favorise la déformation. La combinaison de ces deux effets aboutit à la notion de barrière de fission et de point selle. Selon la masse et le numéro atomique de l'isotope considéré, son comportement vis à vis de la fission est différent : le paramètre de fissilité proportionnel à  $\frac{Z^2}{A}$ , rend compte de l'aptitude d'un noyau à fissionner.

Le modèle de la goutte liquide ne pouvant rendre compte en particulier de certains comportements, le modèle de la "barrière à deux bosses" a été élaboré en 1967 par Strutinski. En effet, la barrière de fission dépend de la répartition en nucléons des noyaux : plus précisément elle dépend de la parité des nombres de neutrons et de protons. On doit observer l'énergie de liaison du noyau composé, et son type de parité.

Ces dernières années, les effets dynamiques du processus de fission ont intéressé les chercheurs, pour aller au delà de la description statistique. Le processus est un processus de diffusion à travers la barrière de fission : des coefficients de dissipation sont introduits pour caractériser la viscosité de la matière nucléaire. Le processus est représenté comme un mouvement collectif en temps fini.

Nous venons d'énoncer les différentes réactions possibles entre les particules et noyaux qui entrent en jeu, en particulier, dans les coeurs de réacteurs nucléaires, en insistant sur la fission induite par neutrons. Nous avons vu que les codes de calculs qui nécessitent les études prospectives sur les options nouvelles faisaient intervenir les données sur ces noyaux : les sections efficaces de fission, nous allons voir quelles sont ces données, ce qu'elles représentent, comment elles sont classées, et dans quelle mesure nous souhaitons apporter notre contribution à l'amélioration de celles-ci dans le contexte que nous venons de décrire.



## 2.2 Section efficace

### 2.2.1 Définitions

La **section efficace microscopique**  $\sigma_i(E)$  exprime la probabilité qu'il y ait une interaction  $i$  entre un projectile d'énergie  $E$  et un noyau cible. Cette grandeur qui a la dimension d'une surface a pour unité le barn ( $1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$ ). Le passage au macroscopique se fait à travers le produit du nombre de projectiles incidents par unité de temps et du nombre d'atomes dans la cible par la section efficace microscopique qui donne le taux de réactions induites dans l'échantillon considéré (c'est ce taux qui est accessible à la mesure, on revient formellement sur ces points au paragraphe 4.1.3 du chapitre 4). La somme des  $\sigma_i(E)$  sur tous les processus  $i$  possibles (parmi ceux décrits précédemment) porte le nom de **section efficace totale**.

### 2.2.2 Sections efficaces des réactions neutroniques

La section efficace d'une réaction neutronique varie avec la nature du noyau cible, le type de réaction observée, et l'énergie du neutron considéré. Pour un noyau, on va représenter la section efficace d'une réaction en fonction de l'énergie.

#### • Variations de la section efficace en fonction de l'énergie des neutrons

On observe une variation systématique des sections efficaces en fonction de l'énergie du neutron incident. Les sections efficaces peuvent varier de plusieurs ordres de grandeur d'une énergie à l'autre. On distingue ainsi 4 zones d'énergie [21] :

- neutrons thermiques d'énergie  $E < 1 \text{ eV}$ , variation lente de la section efficace avec l'énergie (avec des gradients faibles) pour les noyaux intermédiaires et lourds ( $25 < A < 80$ ).
- neutrons lents ou de résonance (zone dite épithermique) correspondant à de brusques variations localisées de la section efficace pour des énergies  $1 \text{ eV} < E < \text{quelques dizaines de keV}$ , au fur et à mesure que l'énergie augmente, l'amplitude de ces résonances (caractérisées par leur largeur  $\Gamma$  et leur amplitude) décroît et leur densité augmente. La largeur de ces résonances est de l'ordre de l'eV.
- neutrons intermédiaires (1 keV à 500 keV) à rapides pour quelques dizaines de keV  $< E < 10 \text{ MeV}$ . La largeur des résonances reste à peu près constante, tandis que l'écart entre chacune d'elle se ressert. Il se produit des recouvrements de plus en plus importants et on retrouve progressivement un comportement à variation lente, c'est le domaine du continuum (résonances éparses dues à l'ouverture de réactions à seuil).
- neutrons rapides, ayant des énergies supérieures à 10 MeV. Certaines singularités (marches, paliers) peuvent être observées.

Cette description générale ne concerne pas tous les noyaux et toutes les réactions, en effet, nous l'avons vu, certaines réactions présentent un seuil pour certains noyaux.

Observons sur la figure 2.1 la variation des sections efficaces de différentes réactions pour un noyau d' $^{235}\text{U}$ .

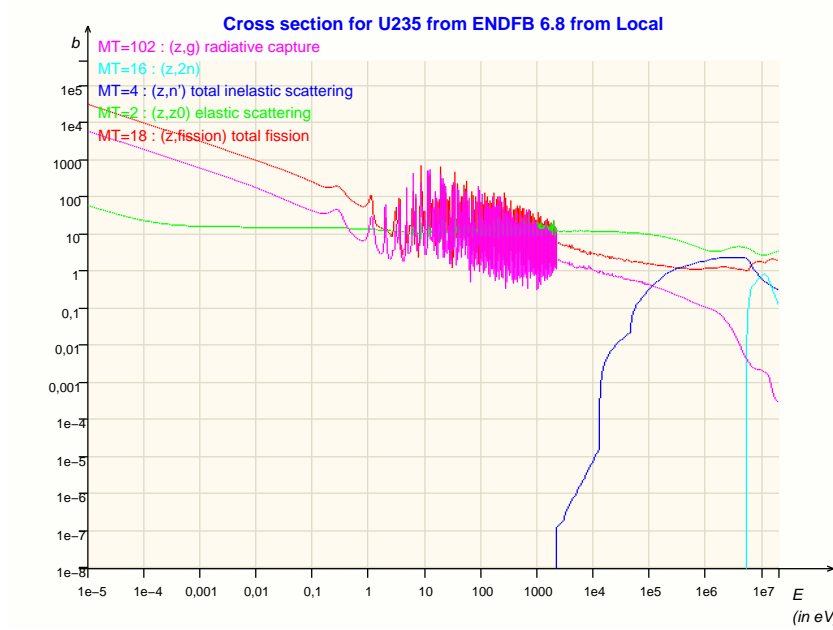


FIG. 2.1 – Variation de sections efficaces évaluées (ENDF-BVI-8) de réactions induites par neutrons sur l' $^{235}\text{U}$ .

Trois réactions semblent avoir un comportement similaire à celui que nous venons de décrire : fission, diffusion élastique et capture radiative. Deux réactions à seuil pour ce noyau d' $^{235}\text{U}$  sont également représentées : la diffusion inélastique et la réaction  $(n,2n)$ . Ainsi, avant une certaine énergie, ces réactions ne sont pas observables.

Intéressons-nous maintenant à la section efficace d'une même réaction, la fission, pour des noyaux différents. Nous allons représenter les sections efficaces de fission de la plupart des noyaux que nous avons mesurés. Sur la partie gauche de la figure 2.2, sont représentées les sections efficaces de fission de l' $^{235}\text{U}$ , du  $^{239}\text{Pu}$  et de l' $^{233}\text{U}$ , l'allure que nous venons de décrire est bien suivie. Ce sont des noyaux fissiles. En revanche, sur la partie droite, les sections efficaces du  $^{237}\text{Np}$ , de l' $^{238}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et de l' $^{234}\text{U}$  présentent un autre comportement : la section efficace ne dépasse pas une valeur significative (0,1 barn), à l'exception de quelques résonances, jusqu'à une certaine énergie, aux alentours d'1 MeV, puis, à partir de ce seuil en énergie, la section efficace prend une valeur significative.

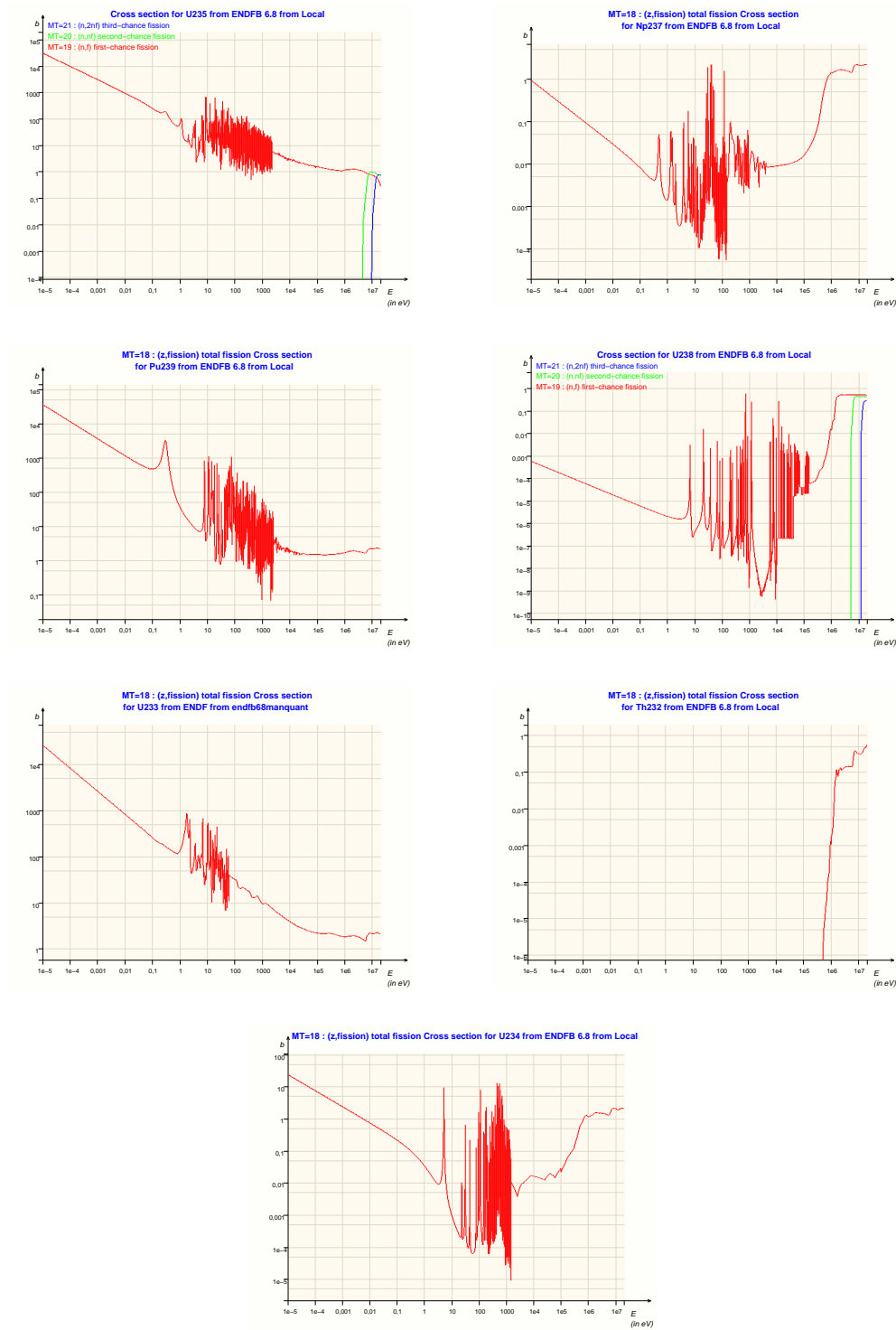


FIG. 2.2 – Sections efficaces de fission évaluées (ENDF-BVI-8) de différents actinides en fonction de l'énergie du neutron incident. La section efficace de fission des noyaux de la colonne de gauche ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{233}\text{U}$ ) est supérieure à 0,1 barn dans tout le domaine d'énergie. Pour les noyaux de la partie droite la colonne de droite ( $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{234}\text{U}$ ), elle n'est supérieure à 0,1 barn (échelles différentes) qu'à partir d'environ 1 MeV.

La fission aux énergies thermiques n'est possible que pour certains noyaux dits fissiles.

Parfois, pour des énergies supérieures à quelques MeV, un noyau ayant évaporé une particule légère peut fissionner, c'est ce qu'on appelle la fission de seconde chance, et on observe l'ouverture de ces voies sur la section efficace de l' $^{235}\text{U}$  représenté sur la figure 2.2, elles sont identifiées par Fomichev sur la figure 2.8, plus loin dans ce chapitre. Dans la section efficace totale, la somme de ces différentes contributions présentera des marches aux énergies caractéristiques des énergies auxquelles ces voies s'ouvrent.

Pour les noyaux qui ne sont pas des actinides :  $^{208}\text{Pb}$  ou  $^{209}\text{Bi}$ , la barrière de fission est bien plus élevée, aussi les sections efficaces présentent-elles un seuil très élevé. Aux alentours de 20 - 25 MeV, comme le montrent les évaluations toutes récentes proposées sur la figure 2.3.

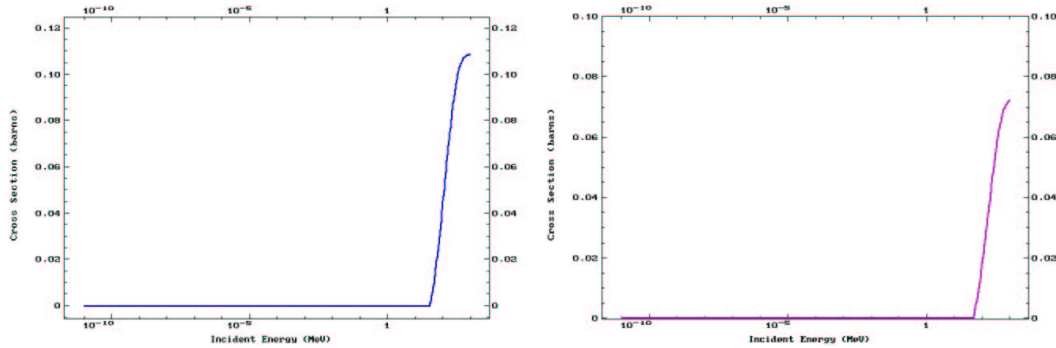


FIG. 2.3 – Sections efficaces de fission évaluées (ENDF-BVI-HE) de différents noyaux sous actinides ( $^{209}\text{Bi}$  et  $^{208}\text{Pb}$ ) en fonction de l'énergie du neutron incident. Les seuils aux alentours de 20 MeV sont observés pour ces noyaux.

### 2.2.3 Relation entre contexte et données de sections efficaces

Jusqu'ici, nous avons vu le cadre de nos mesures : modèles d'interactions et systèmes innovants de production d'énergie. Voyons sur quelques cas précis à quel niveau les données de sections efficaces telles que nous venons de les décrire interviennent dans ce cadre.

#### • Relation entre modèles et sections efficaces des réactions neutroniques

Dans la zone d'énergie au-delà de 10 MeV, le neutron interagit directement avec un ou plusieurs nucléons du noyau. Nous avons dilaté sur la figure 2.4 une zone entre 0,1 eV et 10 keV, c'est à dire dans la zone des résonances. Nous voyons que les zones dites de résonances résolues coïncident, elles sont situées aux mêmes énergies.

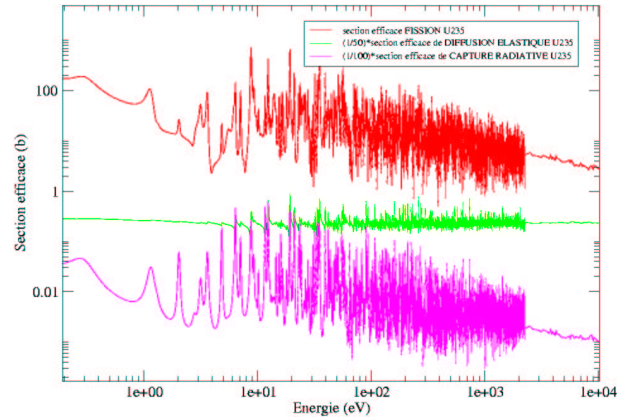


FIG. 2.4 – Partie entre 0,1 eV et 10 keV et mise en comparaison (facteurs 50 et 100 appliqués aux sections efficaces de diffusion et de capture) de la figure 2.1, montrant des structures similaires dans l'évolution des sections efficaces de différentes réactions d'un même noyau (ici l' $^{235}\text{U}$ ).

En se concentrant sur la zone entre 1 eV et 20 eV, représentée sur la figure 2.5, on voit que les formes (les largeurs, les asymétries) suivent la même tendance entre la fission et la capture radiative.

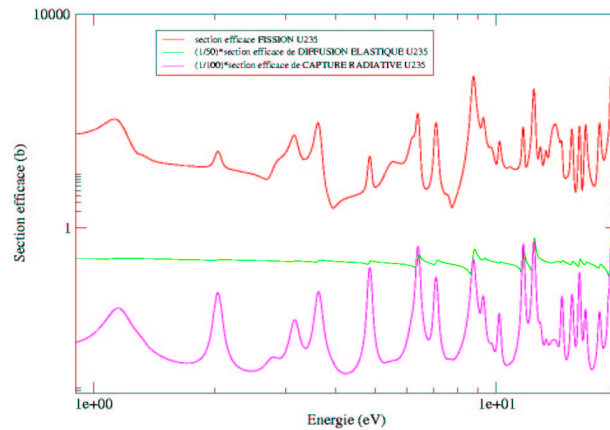


FIG. 2.5 – Partie entre 1 eV et 20 eV de la figure 2.4. Les résonances de fission et de capture ont des paramètres très similaires.

Nous voyons que non seulement les sections efficaces de réactions différentes ont des comportements en fonction de l'énergie (allure, seuil) identiques mais en plus des paramètres de résonances (énergies, forme) similaires. Nous amenons donc assez naturellement la notion de paramètres des résonances (énergie, largeur), auxquelles on va associer les caractéristiques du

noyau.

Nous avons vu qu'on peut se représenter l'interaction d'un neutron dont l'énergie est inférieure au MeV, par le modèle de noyau composé : l'énergie de liaison du neutron est distribuée entre ses nucléons, ce qui définit un état excité du noyau, dont les voies de désexcitation sont multiples : émission de particules par fission, émission alpha ou gamma.

Si l'on représente les niveaux d'énergie du noyau composé  $A+1, Z$ , et une section efficace on comprend bien la correspondance entre les niveaux d'énergie d'excitation du noyau et les énergies des résonances, auxquelles la probabilité de réaction prend des valeurs très importantes.

La largeur des résonances est alors directement corrélée à la durée de vie des états du noyau composé.

Différents modèles vont permettre de rendre compte de la variation rapide des sections efficaces dans ces régions : dans un premier temps on peut utiliser le formalisme simplifié de Breit-Wigner, qui relie les paramètres d'une résonance isolée avec les paramètres caractéristiques des niveaux excités du noyau composé (spin, énergie, parité) [21]. Ensuite, pour ne pas négliger le recouvrement des fonctions d'onde des niveaux, la théorie de la matrice R [22] prendra en compte les interférences entre des résonances dont les énergies sont trop proches pour être considérées indépendantes.

### • Relation entre simulation de systèmes innovants de production d'énergie et sections efficaces

Dans un réacteur, différents paramètres régissent l'évolution du cœur. Le  $k_{eff}$  est le facteur de multiplication qui rend compte de la probabilité qu'une fission engendre une nouvelle fission, c'est le produit du nombre de neutrons émis par fission avec la probabilité qu'un neutron induise une nouvelle fission. Des noyaux fissiles vont fissionner, donnant naissance à des produits de fission qui peuvent agir comme des poisons neutroniques en raison des captures de neutrons auxquelles ils sont susceptibles d'être soumis. Les neutrons qui ne servent pas à entretenir la réaction en chaîne peuvent être absorbés.

Le  $k_{eff}$  va donc faire intervenir les sections efficaces de fission et de capture des différents noyaux.

Nous avons parlé des idées concernant la transmutation des déchets : l'incinération par fission des actinides mineurs, et la transmutation des PFVL par capture. Là encore vont intervenir dans les calculs d'évolution des cœurs dédiés à cette tâche les probabilités des réactions que nous venons de citer en fonction de l'énergie des neutrons disponibles au cours du temps. L'efficacité de ces systèmes dépend de ces paramètres. Le flux de neutrons dans un ADS, par exemple, va être gouverné par les réactions  $(n, n')$  et  $(n, xn)$ .

## 2.3 Bases de données

### 2.3.1 Généralités

Au niveau mondial, l'AIEA [23] tente de coordonner les différents organismes des différentes parties du monde, comme la NEA pour l'OCDE [24], le NNDC aux USA et Canada [25], le CJD dans les pays de l'ancienne union soviétique [26], eux-mêmes chargés de collecter, d'échanger et de documenter les informations provenant de leurs différents membres : les centres de données nucléaires spécialisés où sont produites les données.

Les informations générales sur la *structure* des noyaux, comme la nature de leurs émissions radioactives, leur période, leurs états de spin constituent un premier type de données. Un autre type de données est représenté par les sections efficaces de *réactions*, leur variation en fonction de l'énergie du projectile incident et les paramètres des singularités (résonances, marches) qu'elles présentent. Aux données de sections efficaces de réactions associées à un isotope et un projectile, viennent s'ajouter des données sur les distributions angulaires et/ou en énergie des produits de réaction (noyaux lourds ou légers), les rendements de production.

Toutes ces données provenant de sources différentes, la première distinction réside dans leur origine. On distinguera ainsi les bases de données expérimentales et les bases de données évaluées, ces dernières étant construites à partir des premières.

Dans les deux cas, un effort d'uniformisation a poussé la communauté à les présenter dans des formats standards, regroupant toutes les informations nécessaires. Les fichiers ainsi regroupés forment des bibliothèques.

Ces fichiers au format standard sont donc lisibles directement par l'utilisateur, modifiables par l'outil NJOY par exemple, mais également accessibles grâce à des logiciels dédiés permettant des compilations et des représentations graphiques. On retiendra le logiciel JANIS (Java Based Information Software) distribué par la NEA (téléchargeable sur [27]), pratique pour visualiser et manipuler les bases de données, ainsi que le plus récent ENDVER, distribué par l'AIEA.

S'il existe des données pour les protons incidents, il faut noter que les efforts d'élaboration ont surtout porté sur les bases de données de réactions avec neutrons incidents, et c'est dans ce domaine que se situe notre travail.

Nous allons décrire en quelques mots décrire leur nature, le mode de production et les formes que prennent ces données et les moyens d'y accéder pour les utilisateurs.

### 2.3.2 Les bases de données expérimentales

Les bases de données expérimentales regroupent les données mesurées et collectées depuis les premières expériences de physique nucléaire, assorties des remarques nécessaires à la compré-

hension de la mesure : les auteurs, leur institut, l'installation où s'est déroulée l'expérience, les détecteurs, les méthodes, les corrections...et la nature et les données elles-mêmes, le plus souvent accompagnées de leurs erreurs. Les corrections peuvent être apportées au fil du temps.

L'évolution des dispositifs expérimentaux et les progrès dans les sources élargissent les domaines d'énergie accessibles. On trouvera parfois des mesures pour des énergies ponctuelles, ou des données continues. Rares sont les expériences au delà de quelques centaines de MeV.

Le format standard pour ces fichiers est le format EXFOR. La base de données EXFOR est donc une compilation des données expérimentales (plus de 14 000 expériences !). En ligne elle est accessible sur le site de l'AIEA [28].

### 2.3.3 Les bases de données évaluées

La multiplicité des mesures expérimentales concernant chaque noyau nécessite leur mise en commun avec des données calculées à la lumière des modèles théoriques ou de formules semi-empiriques. Toutes les informations sur tous les processus sont exploitables pour "évaluer" des données. Répertorier, peser la fiabilité et choisir les jeux de données expérimentales est une partie du travail des évaluateurs, stimulant les expérimentateurs pour fournir des informations précises sur leur travail. Si chaque expérience est soigneusement documentée, les propriétés statistiques des données expérimentales sont utilisées pour les ajuster. Ainsi les matrices de covariance sont les outils indispensables des évaluateurs. Elles sont construites en prenant en compte la corrélation des données (qui peuvent être simultanées ou indépendantes (matrice diagonale)). Les décalages entre données, pondérées sur leur fiabilité, permettent d'estimer l'erreur systématique dans chaque intervalle d'énergie.

Ils produisent alors des données dites *évaluées*. Les évaluateurs sont disséminés à travers le monde, et des évaluations différentes selon les méthodes utilisées par les différents centres existent.

Le format standard pour ces fichiers est le format ENDF. Les différentes bibliothèques ainsi obtenues aux 4 coins du monde sont constituées de données évaluées représentant les données recommandées aux utilisateurs pour un noyau pour tel type de données, tel type de réaction. Elles sont accessibles en ligne sur le site de l'AIEA également [29] où l'on distingue les principales bibliothèques suivantes, avec leur version au début 2005 :

- ENDF/B-VI.8 base de données américaine (depuis 1990), maintenant disponible à différentes températures en particulier 300 K
- JENDL-3.3 et JENDL-3.3 300 K base de données japonaise (centre JAERI)
- JEFF-3.1 bibliothèque des états membres de la NEA
- CENDL-2.1 base chinoise



- BROND-2.2 base russe

Dans la plupart des bibliothèques la valeur maximale de l'énergie dans les fichiers évalués est de 20 MeV. Mais les énergies accessibles expérimentalement et l'évolution des modèles et les motivations évoluant, des efforts récents pour évaluer les données ont donné naissance aux bibliothèques Haute Energie (jusqu'à 1 GeV) suivantes :

- ENDF/HE-VI High Energy seulement pour quelques isotopes (C, Fe, Pb, Bi)
- JENDL/HE High Energy seulement pour quelques 66 isotopes compris entre  $Z=1$  et  $Z=80$  (mercure) (pas encore disponible)

L'uniformisation est lente et nécessite de nombreuses validations, basées sur les échanges entre les groupes de personnes motivées par les mêmes applications.

On trouve un recueil des informations bibliographiques sur les réactions induites par neutrons, comportant les travaux expérimentaux, théoriques et d'évaluation dans la bibliothèque CINDA [30].

### 2.3.4 Les bases de données dans les simulations

Les bases de données sont utilisées dans les programmes de simulation sous leur forme évaluée et recommandées par les groupes de travail internationaux formés depuis quelques années (WPEC par exemple). En astrophysique, on pourra envisager de modéliser l'évolution d'une étoile en prenant en compte la nucléosynthèse - formation d'éléments lourds (au delà du  $^{56}_{26}\text{Fe}$ ) - par des processus nucléaire faisant intervenir des sections efficaces de capture sur les noyaux présents en fonction de l'énergie des neutrons disponibles.

Les neutroniciens [21] simulant l'évolution de cœur de réacteurs utilisent les données de section efficace pour calculer la puissance du réacteur, en tenant compte par exemple des effets d'auto absorption dans les régions résolues ou non résolues. Ce sont les bases de données évaluées recommandées qui sont utilisées dans les codes de calcul, parfois moyennées, modifiées pour tenir compte des températures, d'émission de neutrons, parfois couplées pour tenir compte de l'anisotropie...

Le comportement des matériaux de structure sous irradiation, la faisabilité de la transmutation des PFVL dépendent des sections efficaces de capture des noyaux et des projectiles présents ou produits. L'efficacité d'incinération des actinides mineurs dépend de la section efficace de fission sur ces noyaux. Dans le code MCNPX par exemple est implémentée la base de données ENDF-BVI-8.

### 2.3.5 Lacunes et désaccords

Si certains noyaux et certaines réactions, par exemple les fissions sur l' $^{235}\text{U}$ , isotope devenu une référence, ont fait l'objet de beaucoup de mesures et bénéficient de plusieurs années d'exploitation de réacteurs nucléaires utilisant ce combustible, d'autres noyaux correspondant à des technologies plus innovantes, ou plus difficiles à obtenir, ou présentant des contraintes de manipulation, n'ont pas été mesurés. Il y a donc, au sein des bases de données évaluées des lacunes, dans certains domaines d'énergie, et pour certains isotopes. Le théoricien utilisera les données de distribution angulaire des produits de fissions pour relier anisotropies et comportement de la matière nucléaire.

D'autre part, les données expérimentales sont obtenues de manières très différentes d'un laboratoire à l'autre, en effet il faut prendre en compte les différences de source de neutrons et de détecteurs, les corrections effectuées, les méthodes expérimentales. Certaines données seront obtenues en référence à un autre isotope, d'autres seront données en valeur absolue après normalisation.

Comme les données évaluées sont issues des données expérimentales choisies et pondérées de leur incertitude par les évaluateurs, les lacunes et les désaccords entre bases de données expérimentales conduisent à des désaccords profonds entre bases de données évaluées, qu'on peut apercevoir en visualisant une région très restreinte en énergie.

On s'attachera donc à comparer les régions en énergies couvertes par les zones de résonances résolues ou non résolues, ces dernières étant caractérisées par des paramètres de résonance moyens, mais encore à la forme générale du spectre (amplitudes relatives), à la forme des résonances, leur amplitude, selon les domaines d'énergies.

Nous avons décrit le problème : des données recommandées sont nécessaires aux études de faisabilité de systèmes utilisant des technologies innovantes, en particulier dans l'étude des scénarios de filières nucléaires produisant de l'énergie et capables d'incinérer les déchets actuels, en particulier les actinides mineurs. Ces données sont partielles ou imprécises, et peuvent agir de manière plus ou moins sensible sur les paramètres.

### 2.3.6 Précision et résolution en énergie des bases de données, notion de sensibilité

La forme générale des sections efficaces qui peuvent présenter une forêt de résonances très dense, soit un espacement entre 1 et 100 eV pour les noyaux lourds dans la zone des neutrons lents jusqu'à 1 keV, et, entre 1 et 100 keV pour des énergies de neutrons allant jusqu'à 500 keV pour les noyaux intermédiaires, oriente la résolution en énergie que l'on souhaite obtenir.

Mais ces espacements sont déterminés par des modèles (espacement entre niveaux successifs)

et si une très bonne résolution en énergie peut contribuer à apporter des éléments pour affiner (ou confirmer) ces modèles, cette résolution n'est pas nécessaire à tous les types d'application.

Ainsi dans notre contexte, les réacteurs, en général les sections efficaces sont moyennées sur des intervalles d'énergies, qui dépendent du comportement du flux dans les cellules du coeur, des groupes d'énergie sont alors précisés.

Quant au domaine d'énergie qui intéresse généralement la physique des réacteurs il s'étale jusqu'à 20 MeV, limite du spectre en énergie des neutrons de fission, mais il serait intéressant de repousser cette limite supérieure, en particulier pour les ADS.

De même, la précision avec laquelle les mesures doivent être faites est déterminée par la précision au delà de laquelle les paramètres pertinents d'un système donné ne varient sensiblement plus, c'est à dire que l'évolution du système ne change pas si ce paramètre reste dans l'intervalle de précision.

Sur une simulation d'une configuration de réacteur, on peut déterminer la sensibilité des paramètres à la précision sur les sections efficaces, en faisant varier les bases de données sur différents domaines. Selon le domaine d'énergie considéré, on estimera la précision maximum avec laquelle on doit faire les mesures.

Ces préoccupations doivent orienter les expérimentateurs dans leur démarche : la précision demandée va guider les choix parfois coûteux en temps, en énergie, en argent du dispositif expérimental (matériel, mesures complémentaires, analyse...). Les études de sensibilité commencent à se développer, dans le cadre notamment des études de scénarios. Les méthodes elles-mêmes se développent et font l'objet de collaborations internationales. On retiendra par exemple les résultats de calculs récents concernant un réacteur à sels fondus en spectre épithermique refroidi au graphite qui met en évidence l'importance des mesures de capture sur le  $^{232}\text{Th}$  sur tout le spectre en énergie et l'incidence de 0,3% par % de l'incertitude sur le facteur de multiplication  $k_{eff}$  particulièrement important pour le démarrage du réacteur [31].

Elles permettront alors de mettre à jour les besoins exprimés dans les listes de requêtes mondiales, déterminées en fonction des applications, comme celle datant de 1998 de la NEA : la High Priority Request List [32], élaborée à partir des besoins exprimés par les évaluateurs et les groupes d'évaluation (WPEC) et de mesures (WPMA) du Nuclear Science Committee.

En attendant ces méthodes numériques dédiées aux applications, les études systématiques comparant bases de données évaluées et expérimentales mettent en évidence des désaccords profonds entre mesures expérimentales d'une part, et entre certaines bases de données évaluées d'autre part.

Plusieurs réactions interviennent donc dans les réacteurs, parmi elles, la fission, que nous avons choisi d'étudier parce que cette réaction est à l'origine de la production d'énergie dans

les réacteurs, et pour les informations fondamentales qu'elle peut fournir sur la structure des noyaux, et les interrogations qui subsistent encore sur son processus.

## 2.4 Apports des mesures décrites dans cette thèse

Notre volonté d'apporter une contribution aux données de sections efficaces de fission des actinides intervenant dans le contexte décrit dans le chapitre précédent, est conditionnée par la disponibilité des ces actinides, sous la forme voulue, la pureté isotopique, et la limite de toxicité autorisée pour les manipuler.

La fabrication des cibles est un sujet que nous aborderons en décrivant le dispositif expérimental, pour le moment nous allons décrire brièvement, pour les isotopes que nous avons pu mesurer, la manière dont ils peuvent intervenir dans les recherches sur leur comportement, d'une part et sur les systèmes innovants d'autre part.

En nous appuyant sur le document de référence que constituent la Liste des Grandes Priorités pour les mesures, les théories et les évaluations [32], nous allons montrer les besoins en données nucléaires déjà formulés en 1998 par les différents acteurs des domaines relatifs au nucléaire : données de référence, y compris à haute énergie, technologies des réacteurs, applications médicales et industrielles, transmutation. Pour les ADS et la transmutation, aiguillés par les différentes expériences ou démonstrateurs prévus depuis, le groupe formé par l'IAEA s'est focalisé sur différents isotopes : ceux des combustibles, du caloporteur, des matériaux de structure, de la cible de spallation.

Voyons d'un peu plus près, pour chaque actinide, les données expérimentales et évaluées disponibles dans les bases de données, afin d'en dégager les informations que nous pouvons utiliser pour valider nos données, et les informations complémentaires que nous pouvons apporter. L'étude n'est pas exhaustive, mais elle donne une idée du paysage de données pour chaque actinide et soulève quelques questions auxquelles nous souhaitons apporter des éléments de réponse.

Il y a plusieurs types de mesures de section efficaces : celles sur des sources de neutrons d'énergie variant continûment sur un domaine, et celles dites monoénergétiques. La référence utilisée est également différente : souvent utilisée, la diffusion élastique sur le proton de l'hydrogène permet de faire des mesures absolues (Nolte, Pankratov, Eismont, Prokoviev). Il existe également des mesures faites relativement à des isotopes de référence : on peut alors présenter des sections efficaces relatives (Scherbakov), et après normalisation à la valeur de la section efficace de référence, déduire des absolues.

### 2.4.1 $^{235}\text{U}$ , $^{238}\text{U}$ et $^{209}\text{Bi}$ , aller au delà des références actuelles

Puisque les filières actuelles utilisent depuis plusieurs dizaines d'années le cycle  $^{235}\text{U}/^{239}\text{Pu}$ <sup>2</sup>, les actinides de ce cycle ont bénéficié d'études expérimentales et d'évaluations jusqu'à 20 MeV ; les bases de données de section efficace de fission de l' $^{235}\text{U}$ , de l' $^{238}\text{U}$  et du  $^{239}\text{Pu}$ , disponibles en quantité pour les expériences, présentent donc des précisions bien suffisantes sur ces domaines en énergie.

Ils sont d'ailleurs utilisés aux énergies inférieures à 20 MeV comme références dans la plus part des expériences. Surtout l' $^{235}\text{U}$  de longue durée de vie et dont la fission a un bilan énergétique (Q) assez haut et une section efficace d'amplitude raisonnable (supérieure au barn).

A haute énergie, par contre, aucune évaluation n'est encore publiée, à part une étude [33] portant sur des énergies jusqu'à 250 MeV, essentiellement basée sur des calculs théoriques et deux jeux de données (Lisowski 91, pour  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ , et Eismont 96 pour  $^{238}\text{U}$ ), dont les fichiers seront diffusés dans JENDL-HE.

En effet, les quelques mesures à ces énergies obtenues dans les années 60 sont considérées comme qualitatives (goldanski 55, pankratov 62), et à la fin des années 90 (en 97, dans le cadre du Coordinated Research Project de l'AIEA pour l'amélioration des sections efficaces de référence), les résultats obtenus ou attendus sur les différentes mesures effectuées dans la décennie, associés aux progrès des codes de calculs ont motivé leur analyse systématique.

Depuis, en 2001 Shcherbakov montre ses données du rapport  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  (entre autres) à la conférence ND 2001. Au delà de 20 MeV, ces données ne sont pas en accord avec celles qui sont recommandées. De nouvelles données, obtenues de manière indépendante peuvent apporter des informations supplémentaires notamment pour les évaluateurs.

Obtenir des données sur les actinides de référence à haute énergie servira également en métrologie, pour caractériser les flux de particules sur les installations, ou encore pour les technologies assistées par accélérateurs (ADS) : on les trouve dans les combustibles envisagés. On peut aussi citer d'autres domaines d'applications de ces références à haute énergie : médecine (radiothérapie), microélectronique, radioprotection.

A très haute énergie, les codes basés sur les modèles d'évaporation des cascades intra nucléaires (ABLA, GNASH) peuvent être revisités et améliorés. Les théories statistiques tentant d'expliquer les réactions nucléaires peuvent être vérifiées

Les sections efficaces de fission demandées pour les références sont résumées dans le tableau :

---

<sup>2</sup>Les actinides engagés dans ce cycle sont représentés sur la figure A.1 de l'annexe.

Isotope	Intervalle d'énergie	Précision demandée
$^{235}\text{U}$	0,2 MeV- 20 MeV	0,5%
	20 MeV- 200 MeV	1 à 2%
$^{238}\text{U}$	seuil - 20 MeV	0,5 à 1%
	20 MeV- 200 MeV	1 à 2%
$^{209}\text{Bi}$	seuil - 1 GeV	3 à 5%

TAB. 2.2 – Précisions demandées en 1997 sur la section efficace de fission des actinides de référence [34].

#### • $^{235}\text{U}$

$^{235}\text{U}$  est un élément fissile, avec une section efficace de fission assez élevée sur un grand domaine d'énergie, et une durée de vie longue.

A 14,7 MeV, la section efficace est connue avec une grande précision (mieux que 1 %) (beaucoup de mesures faites sur des sources monoénergétiques comme Merla [35] en 1991 ou Alkhazov en 1988, et l'évaluation de Ryves en 1987 qui donne une valeur de 2091 mb et une précision de 15 mb.

Entre 15 et 20 MeV, en 1997, Poenitz met déjà en évidence la nécessité de prendre en compte les données publiées avant 1992 par Carlson [36], Lisowski [37] et Merla [35], dans cette région la section efficace de l' $^{235}\text{U}$  est, semble-t-il, sous-estimée par ENDFB-VI.

Au delà de 20 MeV, les données  $^{235}\text{U}(n,f)$  de Lisowski s'étendent jusqu'à 250 MeV, et atteignent les précisions en fonction des domaines d'énergie résumées dans le tableau 2.3.

Intervalle d'énergie	Précision
30 MeV- 50 MeV	2%
50 MeV- 80 MeV	3%
80 MeV- 120 MeV	4%
120 MeV- 200 MeV	5%

TAB. 2.3 – Précision obtenues sur les données expérimentales de section efficace de fission  $^{235}\text{U}(n,f)$  par Lisowski [37] 1991.

Vers 50 MeV, nous vérifierons si nos mesures reproduisent une structure observée dans les données de Lisowski.

Les données de section efficace absolue entre 20 et 200 MeV et une paramétrisation à partir de ces données expérimentales sont données comme recommandation de référence en 1997 par

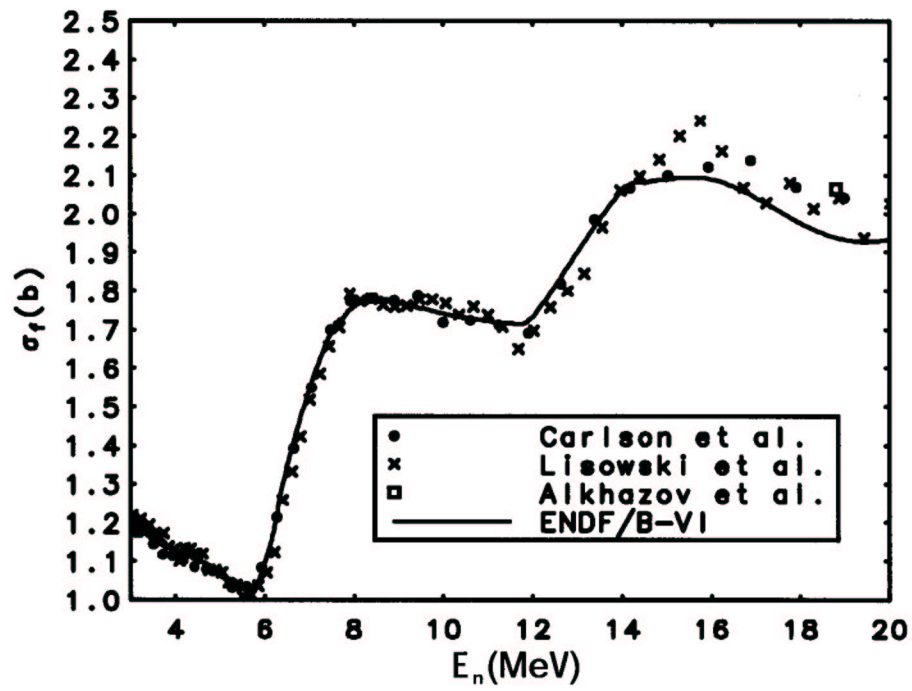


FIG. 2.6 – Comparaisons de mesures récentes de sections efficaces de fission sur l' $^{235}\text{U}$  et de la base de données ENDF-BVI [38].

l'AIEA [34]. D'ailleurs, pour les mesures présentées en 2001 à ND et ISINN [39], Shcherbakov se réfère encore à ces données pour calculer des sections efficaces absolues, c'est à dire pour obtenir le flux de neutrons de haute énergie.

Nolte en 2001 présente des données ponctuelles à 31, 46 et 61 MeV (réanalysées de Newhauser) et 96 et 145 MeV [40], et sont supérieures aux données évaluées. Elles sont représentées sur la figure 2.7

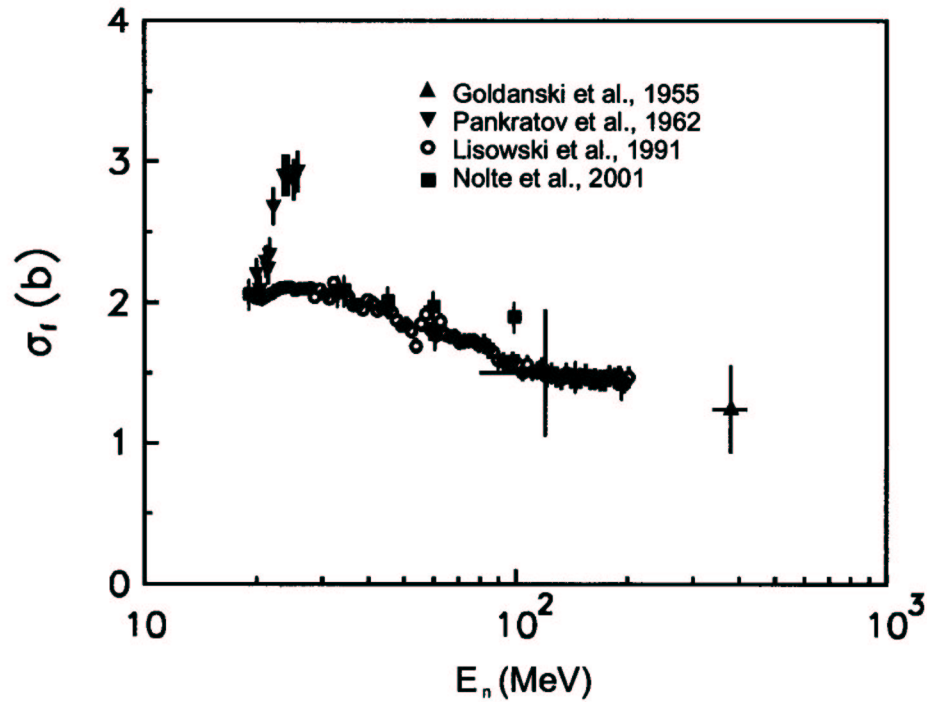


FIG. 2.7 – Mesures au delà de 20 MeV sur l' $^{235}\text{U}$  [38].

En 2003, les auteurs de l'évaluation JENDL-HE, pas encore publiée, utilisent encore au delà de 30 MeV et jusqu'à 250 MeV les données disponibles de Lisowski et des calculs théoriques dont les données recommandées ne diffèrent jamais de plus de 10 %. Une évaluation est en cours de préparation jusqu'à 3 GeV[33], nous pourrions y apporter notre contribution expérimentale. En 2003 encore, AA Fomichev propose une évaluation sur l' $^{235}\text{U}$  [41], comparée aux données de référence et basées sur des valeurs absolues (méthode de la particule associée) obtenues par lui au TSL d'Uppsala en 82 et 84 à 2.6, 4.5, 8.5, 14.5, 19.5 MeV et les mesures de Shcherbakov pour l' $^{235}\text{U}$ , normalisées au flux calculé de GNEIS, et à un point expérimental à 14 MeV. Entre 7 et 10 MeV, cette évaluation propose en particulier des données plus élevées que celles recommandées jusqu'alors (figure 2.8).



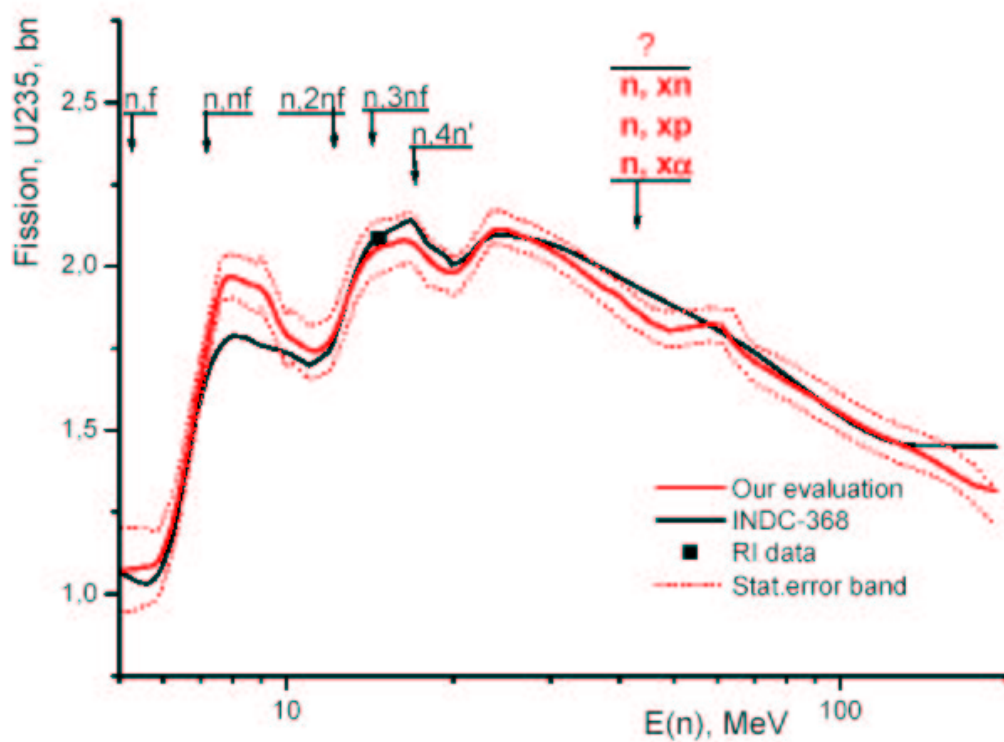


FIG. 2.8 – Récente évaluation proposée par Fomichev pour l' $^{235}\text{U}$ , en rouge, avec la bande d'erreur estimée. On note en particulier qu'elle est significativement plus élevée entre 7 et 10 MeV que les données recommandées.

En apportant de nouvelles mesures sur les références à haute énergie, on peut contribuer à l'élaboration des nouvelles bases de données évaluées à haute énergie. On pourra déjà s'intéresser à la place de nos données par rapport à celles obtenues récemment et représentées sur la figure 2.7 en les comparant à l'évaluation ENDF-BVI.

#### • $^{238}\text{U}$

$^{238}\text{U}$  est un des deux éléments fertiles présents dans la nature. Sa fonction d'excitation présentant un seuil vers 1 MeV, c'est un isotope utilisé comme référence pour des mesures de flux au delà de cette valeur ; en effet une section efficace assez lisse et élevée permet de s'affranchir de la résolution tout en permettant des mesures de flux plus faciles.

Entre 15 et 20 MeV (figure 2.9), en 1997, ENDFB-VI (1.2b pour 1.4b) est pointée du doigt car la base semble sous estimer la section efficace [35, 42, 37].

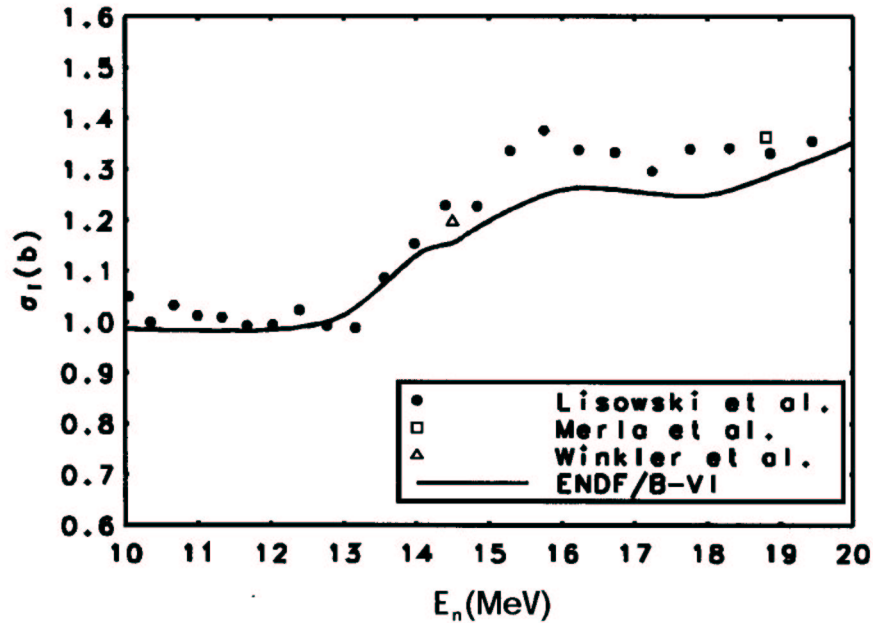


FIG. 2.9 – Comparaisons de mesures récentes de sections efficaces de fission sur l' $^{238}\text{U}$  et de la base de données ENDF-BVI.

Entre 20 et 350 MeV, sont recommandées par l'AIEA des données de référence basées sur les mesures de Lisowski, pour le rapport U8/U5 et pour des valeurs absolues entre 20 et 200 MeV [34]. En effet plusieurs jeux de mesures effectuées entre 95 et 2000 sont compatibles avec ces données [43].

Plus tard, en 2002, dans le rapport JAERI Research [33], pour les données entre 20 et 250

MeV, les auteurs de JENDL-HE utilisent les données pondérées (analyse statistique sur l'incertitude) de Lisowski, Eismont [43, 44] et Donets (ISINN 99), et des calculs théoriques. En 2001, Shcherbakov [39] (et Donets et Fomichev) publie les rapports  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ , compatibles avec Lisowski, mais un peu plus basses (ce qui fait émettre des doutes à Carlson en 2003 [45]) et les mesures relatives à l'U5 (en utilisant les données recommandées par l'AIEA en 97 basées sur Lisowski) jusqu'à 200 MeV. Les résultats sont présentés à la conférence ND 2001, quand débutent les mesures à n\_TOF. Nolte aussi [40], présente des données préliminaires en 2003 (cité par Carlson récemment), qui sont, elles, plus hautes que Lisowski. Tout ceci est illustré sur la figure 2.11. Voir aussi plus loin cette allure sur la figure 2.10.

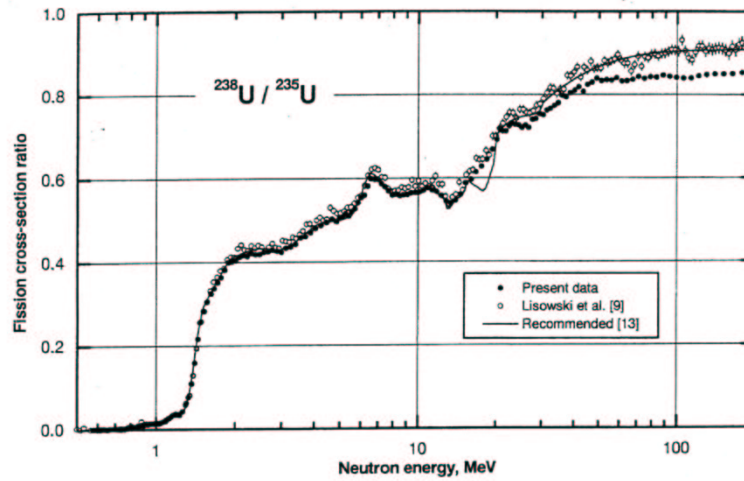


FIG. 2.10 – Rapport à l' $^{235}\text{U}$  le plus récent, mesuré par Shcherbakov, pour l' $^{238}\text{U}$  [39]. Les disques noirs sont les données de Sherbakov, les ronds sont les données de Lisowski [37], et la ligne continue représente des données recommandées [34]

Les rapports de l'AIEA stipulent clairement la nécessité d'effectuer des mesures à haute énergie (au delà de 30 MeV) et de les confronter aux quelques mesures et analyses existantes [34, 38].

#### • le $^{209}\text{Bi}$

Le  $^{209}\text{Bi}$  est utilisé comme référence à haute énergie [46], et il est aussi envisagé dans des solutions de réacteurs rapides refroidis au Pb/Bi, ou comme cible de spallation. Le seuil de la réaction de fission se situe aux alentours de 30 MeV.

A 120, 130, 140 MeV environ, on regarde les anciennes (1955) données (considérées qualitatives par AIEA) de Goldanski.

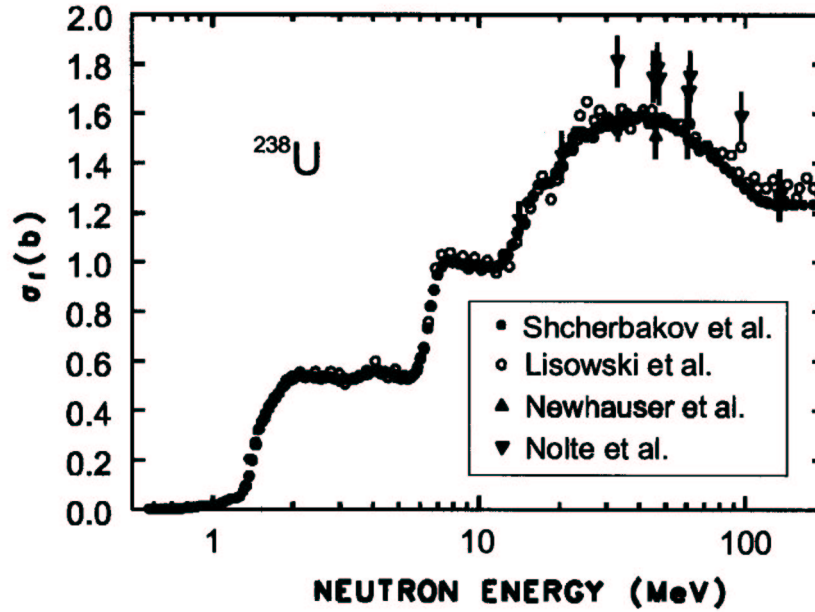


FIG. 2.11 – Comparaison des données de Nolte, Shcherbakov et Lisowski sur l' $^{238}\text{U}$ . Les données de Newhauser représentées ont dû être corrigées, elles sont incluses dans Nolte [38].

En 1997, l'AIEA propose une paramétrisation, en accord avec les données au seuil de Vorotnikov en 1984 [EXFOR=40844] et des quelques données de Eismont en 96 [43].

En 2001, Shcherbakov [39] présente à ND des valeurs plutôt en accord avec les mesures de Staples en 1995 non publiées mais représentées sur la figure 2.12 issu d'un article de Prokofiev [47]. Ce dernier propose en 2001 des données du même ordre (incertitude 10%) pour les énergies : 73,96,135 et 162 MeV. Nolte aussi [40](ND2001), propose des données préliminaires en 2001, pour 46, 61, 96 et 145 MeV. Elles sont en accord avec les données recommandées.

Mais on le voit sur la figure avant 50 MeV et après 120 MeV les données expérimentales s'écartent de la paramétrisation proposée par Smirnov en 97. En outre, nous pouvons voir qu'avant 150 MeV, les données ENDF sont 2 fois plus élevées [39].

Sur les figures 2.13, on observe la mise en évidence, en fonction de l'échelle et des données choisies, des différents points décrits plus haut.

La section efficace de fission du  $^{209}\text{Bi}$  est disponible en base de donnée évaluée haute énergie sur ENDF-BVI-HE. On donne sa représentation sur la figure 2.14 avec quelques données expérimentales :

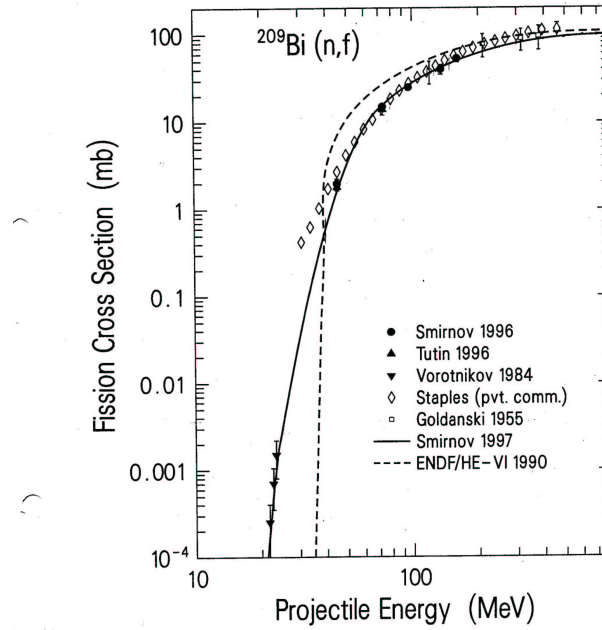


FIG. 2.12 – Section efficace de fission du  $^{209}\text{Bi}$  et paramétrisation [47].

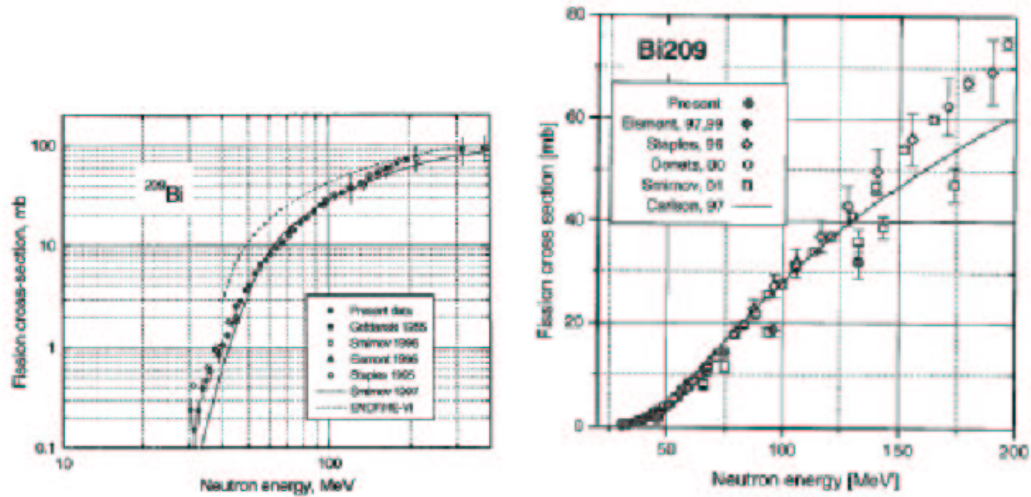


FIG. 2.13 – A gauche, données pour la fission du  $^{209}\text{Bi}$  présentées par Shcherbakov en 2001 [39]. A droite, données présentées par Ryzhov à la même conférence.

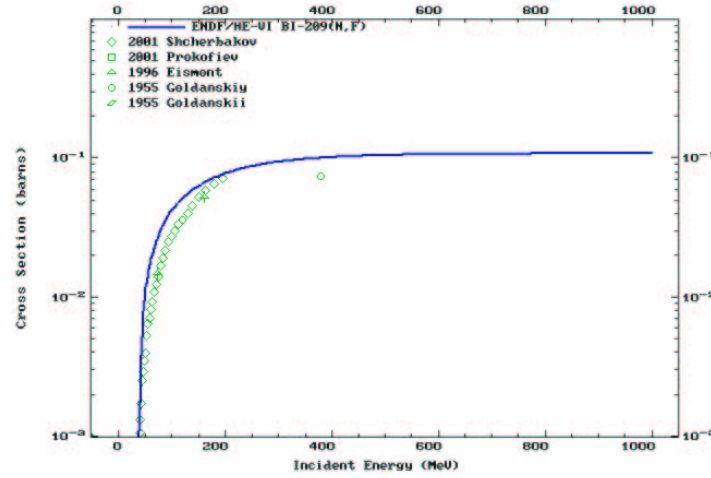


FIG. 2.14 – Comparaison des données récentes ou plus anciennes avec ENDF-BVI pour le  $^{209}\text{Bi}$  [29].

#### 2.4.2 Mesurer le $^{nat}\text{Pb}$ pour les réacteurs

Les cibles de spallation sont en plomb, mercure, tungstène ou uranium. Le plomb peut également être choisi comme caloporteur (réacteurs rapides refroidis au Pb ou au Pb/Bi). Dans une cible de spallation la spallation n'est pas la seule réaction intervenant sur les noyaux, protons et neutrons réagissent avec les isotopes présents, provoquant fissions, évaporations...ce qui contribue à la production des neutrons, à l'activité induite dans la cible, mais aussi à la production de résidus potentiellement toxiques chimiquement ou radiologiquement.

##### • le $^{nat}\text{Pb}$

Notons que l'on mesure ici le  $^{nat}\text{Pb}$ , composé des isotopes 208, 207, 206 et 204.

Une paramétrisation est proposée par Prokofiev en 98 [47] pour le  $^{208}\text{Pb}$ , qui est en accord avec les données de Staples 95 [48] faites sur le  $^{nat}\text{Pb}$  et renormalisées et de Smirnov en 96. Il déduit la section efficace du  $^{nat}\text{Pb}$  en multipliant par un facteur 1.43, vérifié entre 45 et 160 MeV par Prokofiev en 1998, mais ce facteur est mis en question par Nolte [40].

Les données proposées par Shcherbakov [39] en 2001 en diffèrent avant 50 MeV. Dans cette région, les données reprocessées de Smirnov (Pb 208 99/01) sont proches de celles de Shcherbakov, et de Ryzhov à 96 MeV [49] et de Vorotnikov [EXFOR=40844]. Elles laissent présager d'un seuil plus haut se rapprochant de celui représenté par ENDF-BVI. D'ailleurs en 2001, Prokofiev propose de nouvelles données qui s'en approchent [50].

Au delà de 50 MeV, Staples [48], Donets (ISINN 2000) et Shcherbakov sont proches de la

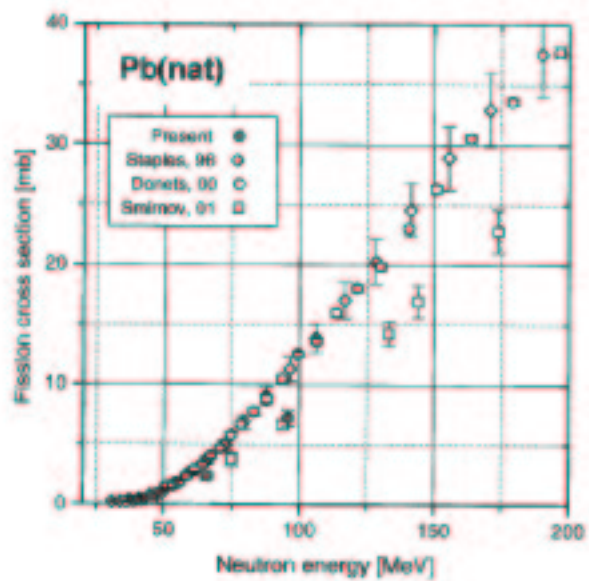
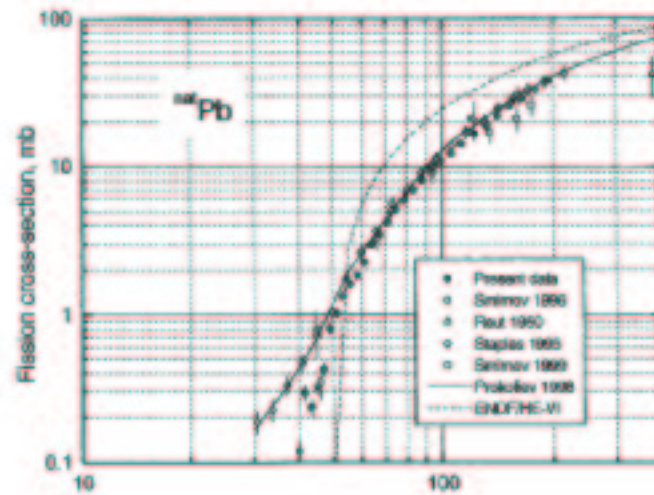


FIG. 2.15 – En haut, données pour la fission du  $^{nat}\text{Pb}$  présentées par Shcherbakov en 2001 [39]. En bas, données présentées par Ryzhov à la même conférence.

paramétrisation 98 de Prokofiev. Entre 50 et 150 MeV, toutes les données expérimentales sont en accord. Smirnov réanalysé en 2000 reste plus faible à 75, 96, 120, 140 et 150 eV, et pour 96 eV, en accord avec Ryzhov [49].

Seul le  $^{208}\text{Pb}$  bénéficie d'une évaluation haute énergie dans ENDF-BVI-HE elle est représentée à droite sur la figure 2.2 de la section précédente .

### 2.4.3 Le $^{232}\text{Th}$ , l' $^{234}\text{U}$ et l' $^{233}\text{U}$ : des actinides du cycle du thorium

Comme on peut le voir sur le schéma de l'annexe A.2, les 8 principaux isotopes participant au cycle du thorium sont :  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{231}\text{Pa}$ ,  $^{233}\text{Pa}$ ,  $^{232}\text{U}$ ,  $^{233}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$  et l' $^{236}\text{U}$ . Parmi ceux là, le  $^{232}\text{Th}$  est fertile, l' $^{233}\text{U}$  est fissile. Du point de vue radiotoxicité, elle est dominée par le  $^{231}\text{Pa}$  et l' $^{232}\text{U}$ ; le  $^{233}\text{Pa}$  est aussi très actif, ce qui entraîne des difficultés de manipulations.

La fission dominant les autres réactions dans les filières au thorium aux énergies de neutrons allant jusqu'à 20 MeV, il est important de rénover les évaluations de ces actinides étudiés dans les années 70 et le milieu des années 80.

Les besoins exprimés dans la HRL [32] en ce qui concerne la fission sont les suivantes : pour les réacteurs une évaluation améliorée est demandée par les russes en  $^{232}\text{Th}$  et  $^{233}\text{U}$ . Pour les ADS, et les modèles de réactions nucléaires, des mesures sont requises aux énergies intermédiaires : 50, 100, 150 et 200 MeV.

Dans la base de données russe BROND-2, ne figurent que l' $^{233}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$ .

Nous avons, pour notre part, mesuré le  $^{232}\text{Th}$ , l' $^{234}\text{U}$  et l' $^{233}\text{U}$ .

#### • Le $^{232}\text{Th}$

Le minerai de thorium est constitué uniquement de  $^{232}\text{Th}$ . C'est l'isotope fertile du combustible (comme l' $^{238}\text{U}$  dans le cycle uranium). Le combustible contient du  $^{232}\text{Th}$  et de l' $^{233}\text{U}$ . Contribuant à 3 % des fissions dans un ADS ou réacteur rapide équivalent [51], et pour au moins 8 % dans un réacteur refroidi au gaz, le principal impact du  $^{232}\text{Th}$  dans le cœur est sa contribution de 2 % aux neutrons retardés (au lieu de 0,25% pour l' $^{233}\text{U}$ ).

Le seuil de fission est donné à 400 keV par JENDL, et à 500 keV par ENDF-BVI, comme on peut le voir sur la figure 2.16.

JENDL 3.2 propose une résonance de  $10^{-1}$  barns à  $\approx 400$  keV. A part dans la zone du seuil, les évaluations sont comprises dans une bande de 5-10 % : les structures sont les mêmes dans les différentes bases (paliers de fission de 1<sup>ère</sup> et 2<sup>ème</sup> chance).

Dans la zone du seuil, autour de 1 MeV, il y a presque un ordre de grandeur entre JENDL et ENDF-BVI (figure 2.17).



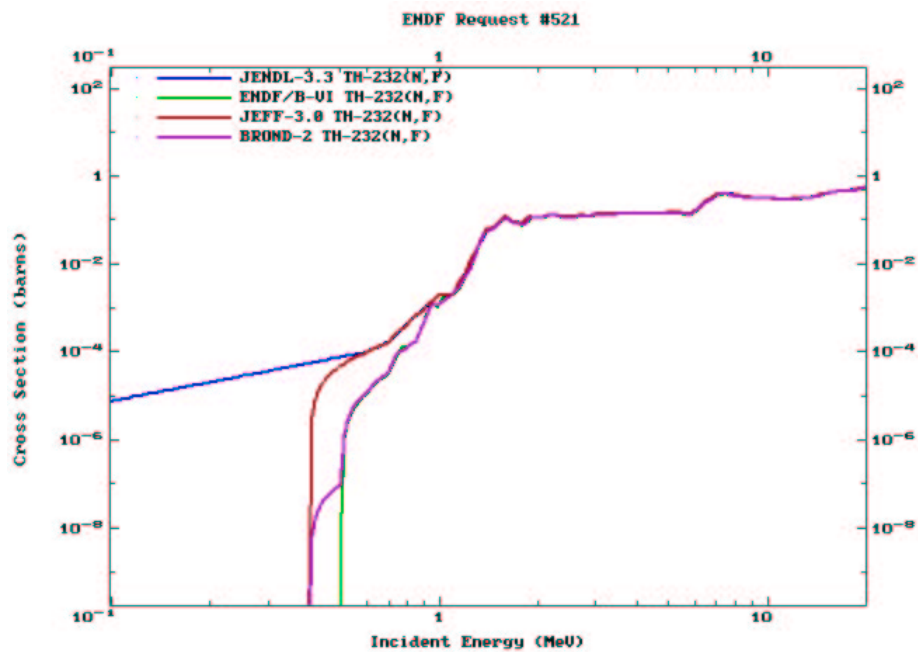


FIG. 2.16 – Le seuil de fission du  $^{232}\text{Th}$  est différent d'une base à l'autre.

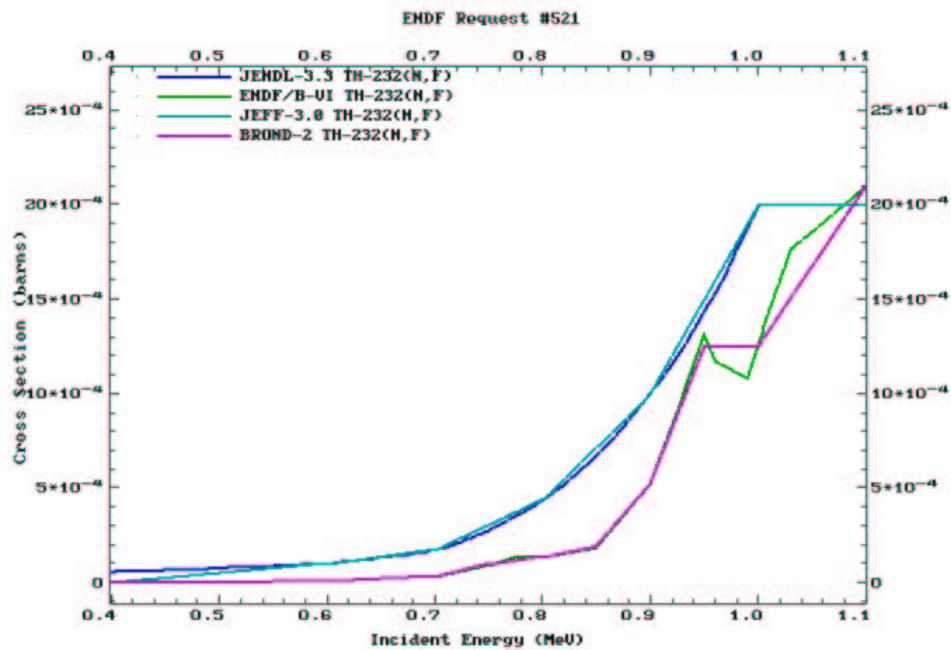


FIG. 2.17 – Autour de 1 MeV, une grande différence entre bases de données pour la fission du  $^{232}\text{Th}$ .

La section efficace de fission du  $^{232}\text{Th}$  est demandée avec 5 % de précision. Dans la zone du seuil, on a représenté, sur la figure 2.18, les données expérimentales (Shcherbakov) et les données évaluées. Les valeurs de Perez sont moyennées sur le domaine d'énergie. On trouve par exemple une compilation des expériences autour de 10 MeV sur le  $^{232}\text{Th}$  dans [52]. Au delà de 20 MeV les données de Shcherbakov surestiment les sections efficaces par rapport aux expériences de Lisowski. Ce sont les seules données à ces énergies. Nous plaçons ces données extraites de ND 2001 sur la figure 2.19.

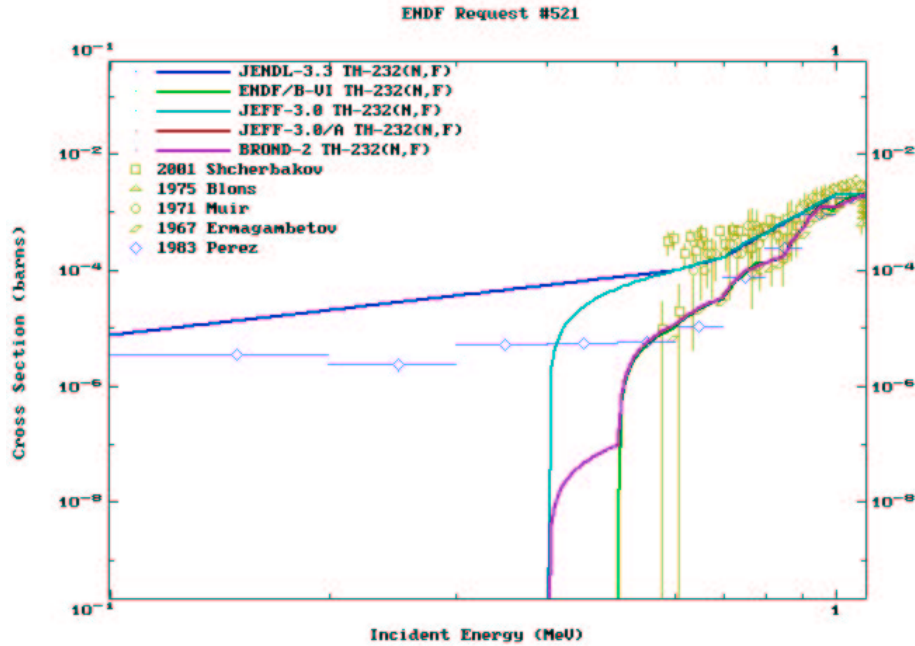


FIG. 2.18 – Données évaluées et données expérimentales pour le  $^{232}\text{Th}$ .

Il est intéressant de noter que le  $^{232}\text{Th}$ , noyau pair-pair, présente un "anomalie" (c'est le  $^{233}\text{Th}$  qui fissionne en réalité) : en effet une barrière de fission supplémentaire semble avoir été observée : ce qui conduirait à un éventuel troisième puits de fission dans le potentiel représenté en fonction de la déformation [52].

#### • $^{233}\text{U}$

L' $^{233}\text{U}$  est l'élément fissile du combustible thorium généré par capture neutronique et désintégrations  $\beta$  sur le  $^{232}\text{Th}$  (voir chaîne dans le paragraphe 1.3.3). La puissance et les dimensions critiques du réacteur dépendent directement de la section efficace de fission de cet isotope.

Les bases de données expérimentales montrent des différences selon la zone en énergie considérée. Si l'on moyenne les valeurs sur de larges plages en énergie (pour obtenir des constantes

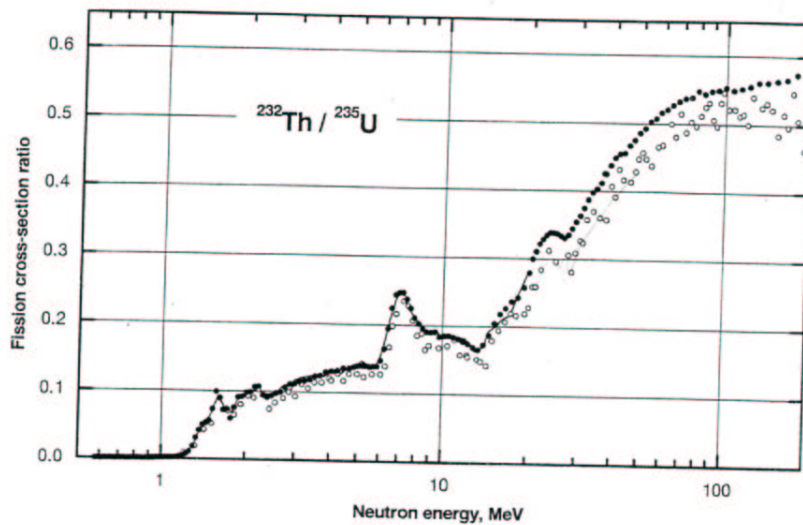


FIG. 2.19 – Rapport à l' $^{235}\text{U}$  le plus récent, mesuré par Shcherbakov, pour le  $^{232}\text{Th}$  [39]. Les disques noirs sont les données de Shcherbakov, les ronds sont les données de Lisowski [37], et la ligne continue représente des données recommandées [34]

multigroupe), les différences s'estompent.

Entre 8 et 9 eV, Guber, en 2001, prévoit expérimentalement un creux.

On observe, par exemple, autour de quelques dizaines d'eV, un décalage des positions des résonances entre les bases ENDF et JENDL. ENDF semble décalée par rapport aux données expérimentales (figure 2.20).

En ce qui concerne les limites des zones résolues et non résolues, la limite supérieure de la RRR diffère entre ENDF-BVI (60 eV) et JENDL-3.2 (150 eV) (figure 2.21).

Repousser la limite supérieure de la zone des résonances résolues (grâce à une bonne résolution) peut améliorer la prise en compte des effets d'auto absorption dans les cœurs de réacteurs par exemple aux énergies des résonances.

Un peu avant 1 keV, une structure représentée dans JENDL introduit une différence de près de 20 % entre les bases. Les données de Guber, jusqu'à 700 keV (un peu décalées de Nizamudin 1974) montrent des résonances séparées de quelques dizaines d'eV. A partir de 1 MeV, les données de Shcherbakov semblent plus proches de l'évaluation JEFF, que d'ENDF (figure 2.22). Voir aussi la figure 2.23.

L' $^{233}\text{U}$  est attendu avec 1 % de précision, voire même 0,5 % dans la région d'intérêt.

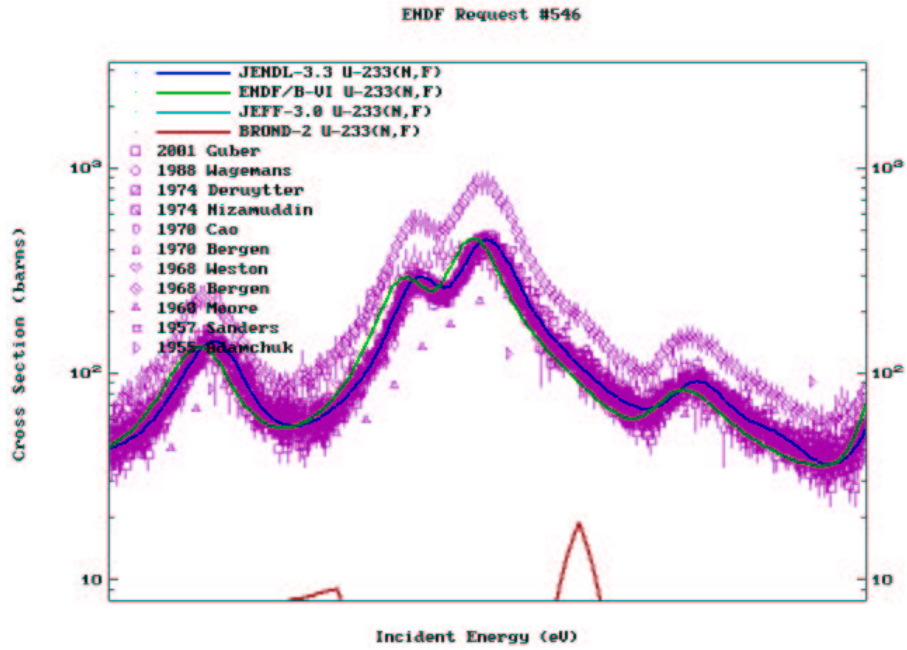


FIG. 2.20 – Décalage, autour de quelques dizaines d'eV entre résonances des bases ENDF et JENDL pour l' $^{233}\text{U}$ . Quelques données expérimentales sont également représentées.

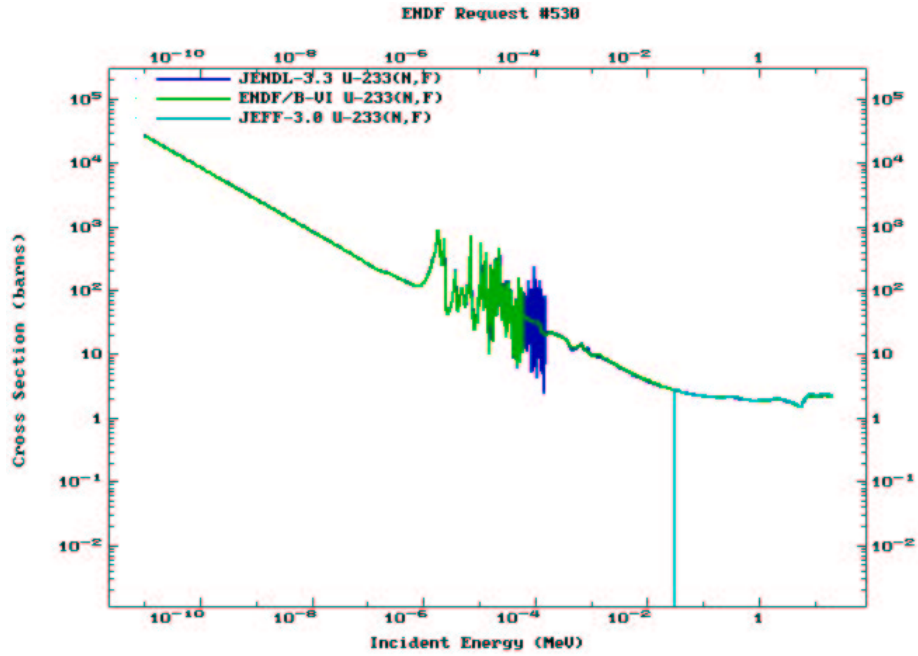


FIG. 2.21 – Comparaison entre ENDF-BVI et JENDL-3.2 pour la section efficace de fission de  $^{233}\text{U}$ . Observer les limites de résonances résolues.

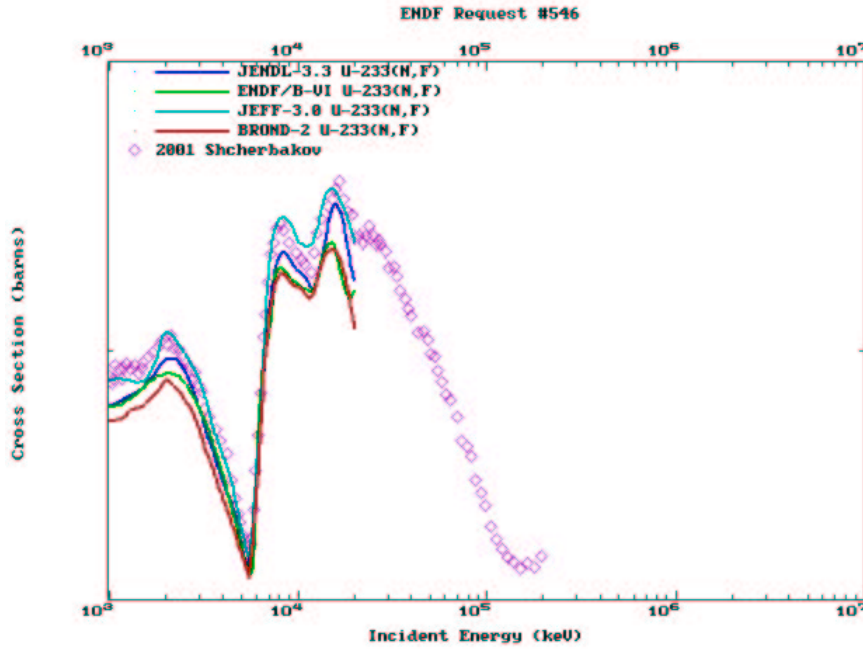


FIG. 2.22 – Comparaison entre les bases évaluées et quelques données expérimentales à partir du MeV pour la section efficace de fission de l' $^{233}\text{U}$ .

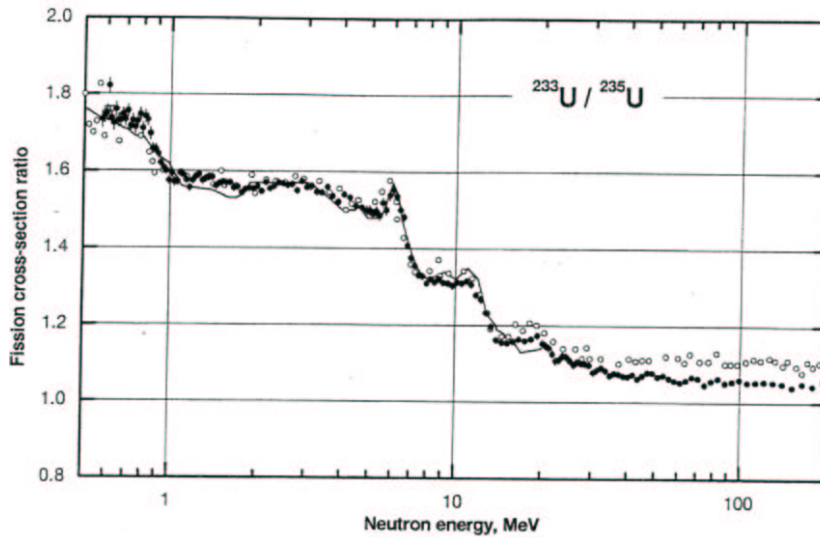


FIG. 2.23 – Rapport à l' $^{235}\text{U}$  le plus récent, mesuré par Shcherbakov, pour l' $^{233}\text{U}$  [39]. Les disques noirs sont les données de Shcherbakov, les ronds sont les données de Lisowski [37], et la ligne continue représente des données recommandées [34].

- $^{234}\text{U}$

$^{234}\text{U}$  est commun aux deux cycles du combustible, car il se forme par  $(n,\gamma)$  sur l' $^{233}\text{U}$ , et il est formé par  $(n,2n)$  sur l' $^{235}\text{U}$ .

Les valeurs de section efficace pour des neutrons thermiques sont 75 fois moins grandes dans JENDL que dans ENDF. Mais une mesure récente (Wagemans [53]) se rapproche de ENDF. Entre 1 et 10 MeV, les données sont dans un intervalle de -4.6% à 3.8 %.

Dans les 2 bases la zone de résonances résolues s'étend jusqu'à 1,5 keV, mais la région non résolue s'étend jusqu'à 100 keV dans ENDF, et jusqu'à 50 keV dans JENDL.

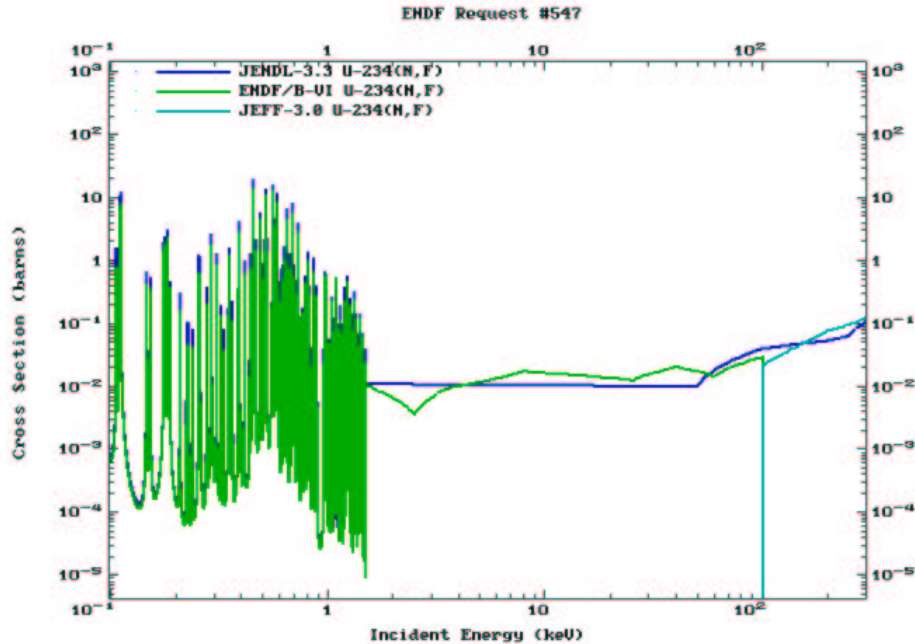


FIG. 2.24 – Comparaison des limites de zones de résonances non résolues pour la section efficace de fission de l' $^{234}\text{U}$ , entre ENDF et JENDL.

Il y a assez peu de données dans EXFOR, et elles ne vont que jusqu'à 20 MeV.

L' $^{234}\text{U}$  est demandé avec 3 % de précision.

#### 2.4.4 Le $^{237}\text{Np}$ , un des actinides mineurs à transmuter

Pour étudier leur transmutation dans les réacteurs dédiés, les actinides mineurs ( $^{241,243}\text{Am}$ ,  $^{244,245}\text{Cm}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ) doivent être mesurés, et ce au delà de l'énergie seuil. Sur la figure 2.25, on peut observer la superposition d'un spectre rapide typique et des sections efficaces de fission des principaux actinides mineurs.

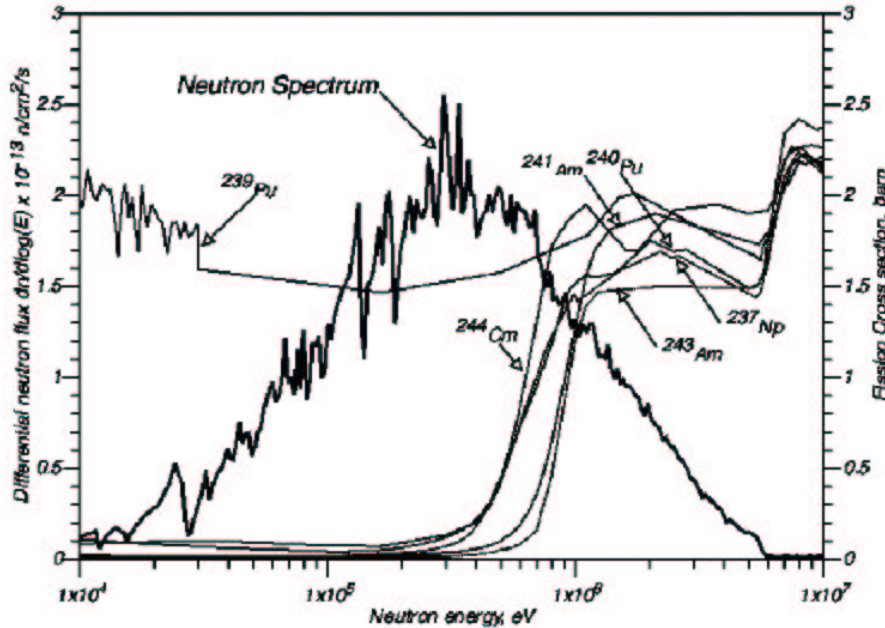


FIG. 2.25 – Superposition d'un spectre de neutrons rapides d'un réacteur Pb/Bi à différentes sections efficaces de fission d'actinides mineurs et de la section efficace du  $^{239}\text{Pu}$  [54].

Nous avons pu mesurer le  $^{237}\text{Np}$ .

#### • Le $^{237}\text{Np}$

Le neptunium-237 est l'actinide mineur le plus abondant. Il est généré à partir de captures dans l'uranium-235, mais il est de loin le moins actif, sa période étant de 2,15 millions d'années. Il est difficile à incinérer, sauf dans des réacteurs avec un haut flux de neutrons.

Les résonances sous le seuil présentent de larges désaccords pour le  $^{237}\text{Np}$ .

Les mesures au delà de 20 MeV, présentées par Shcherbakov ne sont pas en désaccord avec Lisowski (voir figure 2.26), contrairement aux autres isotopes que nous avons présentés.

Pour la section efficace de fission du  $^{237}\text{Np}$ , la HPRL [32] demande entre 3 MeV et 15 MeV une précision entre 2 et 3%.

Nous avons décrit, pour les noyaux qui nous intéressent, quelques désaccords observés, leur possible origine, et nous allons dans la suite du document, montrer comment, grâce à notre dispositif expérimental placé auprès d'une source de neutron performante, nous voulons contribuer à combler les lacunes, ou à préciser certains points.

Si la plus part des mesures se sont déroulées jusqu'ici auprès d'installations comme le GNEIS, GELINA, ou WNR, nous avons choisi en 2000, d'exploiter la toute nouvelle installation n\_TOF,

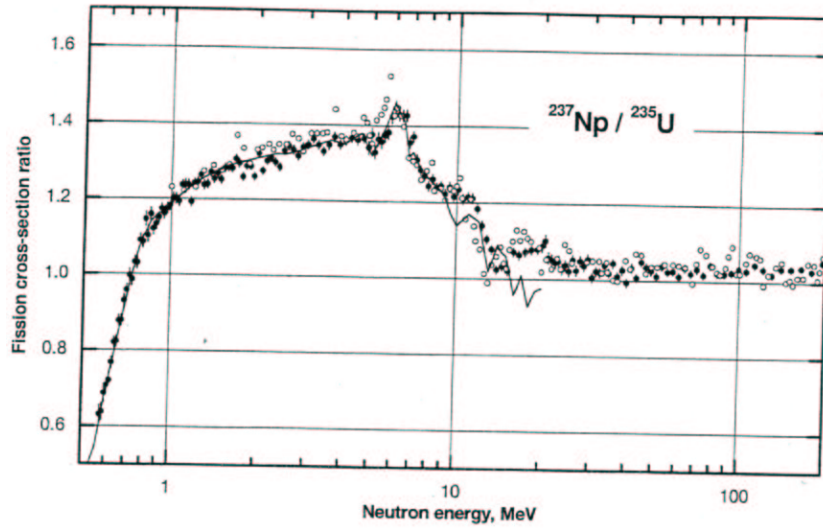


FIG. 2.26 – Rapports à l' $^{235}\text{U}$  les plus récents, mesurés par Shcherbakov, pour le  $^{237}\text{Np}$  [39]. Les disques noirs sont les données de Sherbakov, les ronds sont les données de Lisowski [37], et la ligne continue représente des données recommandées [34].

dont le haut flux de neutrons et l'étendue en énergie laissait envisager des mesures en accord avec nos objectifs. C'est ce que nous allons montrer dans le chapitre suivant.





## Chapitre 3

# Une nouvelle source de neutrons : n\_TOF

La production de neutrons par réactions nucléaires s'accompagne en général de l'émission d'autres particules, qu'on ne souhaite pas exploiter, et dont la nocivité nécessite protection, confinement ou stockage éventuel. Parmi les différents procédés possibles, la source de neutron n\_TOF utilise la spallation. C'est d'ailleurs, on va le voir, une des plus intenses sources de neutrons en opération et se plaçant au rang des nouvelles sources en projet aux Etats-Unis et en Europe : SNS et ESS.

### 3.1 Produire des neutrons pour mesurer des sections efficaces

Il existe à travers le monde plusieurs sources de neutrons dites blanches, c'est à dire dont les énergies s'étalent sur un large domaine (par opposition aux sources mono-énergétiques). Recensées dans les années 90 [55, 56], les sources de neutrons sont issues de l'exploitation de différentes réactions que nous décrivons ici succinctement. Nous insistons sur le principe de la spallation, à l'origine des neutrons sur n\_TOF. Nous montrons en quoi cette installation possède les caractéristiques adéquates aux mesures de données nucléaires neutroniques pour lesquelles elle a été développée dès 1999, et en particulier, pour celles que nous avons menées.

#### 3.1.1 Réactions de production de neutrons

Enumérons les différentes réactions pouvant être à l'origine de production de neutrons : les réactions de protons, deutons, tritons, ou alphas sur des noyaux légers comme le  $^9\text{Be}$  ou  $^7\text{Li}$ , la spallation des noyaux lourds comme ceux du plomb ou de l'uranium, la fission (spontanée ou

provoquée) de noyaux lourds. Le rendement en neutrons se calcule par rapport à la puissance du faisceau incident.

Signalons la production par particules  $\alpha$  de radioactivité et les sources monoénergétiques que constituent les réactions de projectiles comme des noyaux de deutérium basse énergie sur tritium exploitées par exemple sur GENEPI au LPSC de Grenoble ou bien moyenne énergie sur des noyaux légers comme le lithium (1 neutron par particule incidente) exploitées dans des installations comme au TSL à Upsalla en Suède ou au KRI en Russie.

Une mention seulement sur les fissions spontanées (environ 3 neutrons par fission et d'énergie de quelques MeV), qui ne permettent pas de produire de grandes quantités de neutrons avec une intensité suffisante. Nous insisterons donc sur les réactions susceptibles de donner des sources intenses de neutrons : fission induite par neutrons ou photons, et enfin spallation.

- Nous avons présenté dans le paragraphe 2.1.3 la réaction de **fission** provoquée, et nous avons vu qu'en moyenne, au cours de chaque fission induite par un neutron thermique sur l' $^{235}\text{U}$ , 2,5 neutrons sont émis avec un spectre en énergie maxwellien centré à 2 MeV environ. Citons par exemple la fission sur l' $^{235}\text{U}$  dans des réacteurs comme Orphée au LLB, ou celui de l'ILL. Ces sources de neutrons sont continues. Elles permettent de faire des mesures intégrales, mais ne permettent pas de mesurer l'énergie des neutrons par temps de vol.

- Une autre méthode consiste à envoyer un fort courant ( $\sim 100$  mA) d'électrons entre 100 et 180 MeV fournis par un accélérateur linéaire (linac) sur une cible épaisse de noyaux lourds. Les électrons se ralentissent sur les noyaux lourds en produisant des photons (Bremsstrahlung). Ces photons ont une énergie suffisante pour induire la fission des noyaux lourds (**photofission**).

Ainsi, on produit environ 0,05 neutron par électron de 100 MeV avec un spectre typique de neutrons de fission. Par exemple GELINA (Geel Electron LINac Accelerator) à l'IRMM de Geel (Belgique) [57], ORELA (Oak Ridge Electron Linear Accelerator) à l'ORNL d'Oak Ridge (USA).

- Définissons maintenant la réaction exploitée sur l'installation n\_TOF : la **spallation**. On appelle spallation<sup>1</sup> la réaction induite par des protons de haute énergie (au delà de quelques centaines de MeV) sur un noyau. Dans un premier temps, le proton éjecte individuellement des nucléons du noyau (protons ou neutrons), dont l'énergie peut aller jusqu'à l'énergie du proton incident. Le noyau résiduel se trouve ensuite dans un état excité et se désexcite en évaporant des nucléons (essentiellement des neutrons), avec un spectre en énergie d'évaporation de quelques MeV. Cette phase est appelée cascade intranucléaire. Notons que le noyau peut également se désexciter par fission ou multifragmentation, qui sont alors des voies concurrentes de la spallation. Dans une cible épaisse, les particules émises peuvent initier à leur tour de nouvelles réactions de spallation, formant ainsi une cascade internucléaire.

---

<sup>1</sup>to spall = déliter, effriter.

Pour obtenir une source intense de neutrons, on utilisera une cible liquide ou solide de noyaux lourds (les plus productifs en neutrons) comme l'uranium, le tungstène, le plomb, le thallium ou le mercure. En moyenne, selon le noyau cible, on peut obtenir quelques dizaines de neutrons par proton incident de 1 GeV. Au delà le nombre de neutrons produits varie linéairement avec l'énergie du proton incident, pourvu que la cible soit suffisamment épaisse pour contenir l'ensemble de la cascade internucléaire. La cible peut être adaptée pour obtenir le spectre de neutrons voulu, en particulier, on peut l'entourer d'un modérateur, pour produire des neutrons de basse énergie.

L'utilisation d'un accélérateur (électrons ou protons) peut permettre d'obtenir une source pulsée de neutrons et ainsi de remonter à l'énergie des neutrons en mesurant leur temps de vol.

Citons les principales sources de neutrons de spallation récentes :

1. Sources continues

- Sources en projet
  - Megapie
- Sources en opération
  - à PSI : Source SINQ "the first continuous source of its kind in the world" .

2. Sources pulsées

- Sources en projet
  - SNS Spallation Neutron Source à Oak Ridge (en construction attendue pour 2006)
  - Long Pulse Spallation Source (LPSS) et SPSS à Lانسce
  - European Spallation Source (ESS) abandonné ?
- Sources en opération
  - à Lانسce au LANL : **W**eapons **N**eutron **R**esearch Facility (WNR) et le **M**anuel **L**ujan Jr. **N**eutron **S**cattering **C**enter (MLNSC) d'énergies petites, typiquement entre 1 et 200 meV pour des études de la matière condensée.
  - Isis (RAL, UK)("la plus brillante des sources pulsées de neutrons du monde")
  - GNEIS au PNPI à Gatchina sous l'égide du KRI (Russie)
  - et enfin n\_TOF, caractérisée par l'énergie très élevée de 20 GeV du faisceau de protons incidents.

### 3.1.2 Description d'une source de neutrons

Ainsi, selon les applications (instrumentation, mesures fondamentales ou appliquées - irradiations, astrophysique, nouvelles technologies, structure des matériaux, biologie, thérapie...) et les contraintes expérimentales, on choisira une installation sur les caractéristiques de son faisceau de neutrons. Ces caractéristiques dépendent des différents points suivants :

- le faisceau incident :

- nature des particules et réaction avec la cible émettrice
- les différents modes accessibles
- l'énergie ou le moment des particules incidentes permettant de prévoir le spectre en énergie des neutrons
- le courant de particules incidentes
- taux de production de la réaction exploitée
- source pulsée ou continues
- ▷ et si la source est pulsée :
  - possibles fréquences de répétition d'un paquet de protons
  - largeur, éventuellement ajustable, de pulse de particules incidentes : un des facteurs conditionnant la résolution en énergie accessible
- en aval de la source, les différentes lignes de faisceau :
  - système de collimation, possibilité de placer du matériel d'écrantage dans le faisceau
  - sécurité liée à l'activation
  - nombre de lignes, disposition et position des stations de mesure
  - longueur de vol
- le faisceau de neutrons :
  - le flux de neutrons en fonction de l'énergie à l'endroit de la mesure, si possible paramétrisé.
  - le flux intégré sur toutes les énergies
  - la résolution en fonction de l'énergie
  - bruit de fond dans la station de détection
  - cycle utile rapport temps d'observation/taux de répétition selon L et choix d'énergie minimale
  - une quantité appelée figure de mérite a été introduite pour évaluer la qualité d'une installation en offrant un moyen de comparer les installations entre elles. Cette quantité fait intervenir certaines des caractéristiques quantifiables précédemment citées, comme le flux et la résolution en énergie. Ce genre de grandeur est en général dépendant de l'application pour laquelle le faisceau doit être dédié, ainsi par exemple, on trouvera une comparaison des sources blanches de neutrons dans [58], pour des expériences d'astrophysique utilisant de très petits échantillons radioactifs, avec une F.O.M. définie pour l'occasion et on verra que pour n\_TOF, une nouvelle F.O.M. peut être définie.

### 3.1.3 Mesures par la méthode du Temps de Vol

Dans le cas d'une cible de spallation pulsée, comme n\_TOF, les neutrons sont émis pendant un temps  $\Delta t_{\text{faisceau}}$  aussi bref que possible, avec un certain taux de répétition. On calcule l'énergie d'un neutron à partir de son temps de vol entre l'instant de sa production dans la cible de spallation et l'instant de la réaction induite sur l'échantillon cible étudié, placé à la distance de vol  $L$ , de la cible.

La précision avec laquelle on connaît le temps de parcours du neutron dépend de l'incertitude sur l'instant de départ due à la largeur ( $\Delta t_{\text{faisceau}}$ ) de l'impulsion et de l'incertitude sur l'instant d'arrivée [21].

L'instrumentation placée auprès de ces installations est donc adaptée aux mesures de temps, et leur précision est essentielle à celle des mesures. Nous verrons plus loin comment interviennent les quantités introduites ici dans nos mesures.

## 3.2 Historique d'une collaboration : objectifs

Suite à l'expérience TARC (voir paragraphe 1.3.2), conduite entre avril 1996 et mai 1997 au CERN, une grande quantité de plomb très pur (d'impureté dominée par 19 ppm de Bi [59]) est disponible au CERN.

Auprès du Proton Synchrotron (PS), qui peut accélérer des protons de haute énergie (jusqu'à 24 GeV), une source de neutrons de spallation d'énergies réparties sur un large spectre, a donc pu être construite sous l'égide du CERN. L'installation envisagée est décrite en détail dans la référence [60] et ses performances évaluées dans la référence [61].

On estime à 30 neutrons la production associée à un proton de 1 GeV. Comme ce nombre varie linéairement avec l'énergie des protons, la production maximum attendue est de 600 neutrons par proton incident de 20 GeV.

Le PS peut accélérer jusqu'à 9 paquets de  $7 \cdot 10^{12}$  protons toutes les 14,4 s<sup>2</sup>.

De plus, on dispose d'un long tunnel d'environ 200 m appelé TT2A (ancien tunnel de l'ISR) et prolongeant une des lignes (TT2) d'extraction du faisceau du PS.

Motivés par les possibilités offertes par cette nouvelle source intense de neutrons, les chercheurs de plus de 40 instituts de 15 pays différents ont créé une collaboration, en vue d'obtenir de nouvelles données. Différents types d'expériences sont proposés auprès du comité INTC<sup>3</sup>, déjà en charge d'ISOLDE. Pour rendre compte des propositions d'expériences envisagées auprès de l'installation n\_TOF, la première proposition [62] est publiée. Les caractéristiques de l'installa-

<sup>2</sup>Toutes les 16,8 s, multiple de 1,2 ms également, à partir de 2003

<sup>3</sup>INTC : ISOLDE and Neutron Time of Flight Experiments Committee.

tion et le comportement in situ des détecteurs doivent être mesurées pendant une phase dite de commissioning [63].

Les priorités dans les besoins en nouvelles données sont éditées dans la "High Priority List" de la NEA [32] pour les réacteurs nucléaires innovants de production d'énergie et de transmutation de déchets. Pour mesurer les données relatives à la transmutation et aux ADS, un contrat a été signé entre la Communauté Européenne et la collaboration n\_TOF, dont les missions sont définies au sein du projet n\_TOF-ND-ADS. Les astrophysiciens proposent des expériences sur des noyaux susceptibles d'intervenir dans la nucléosynthèse dans les étoiles [64, 65, 66].

Dans le cadre des études menées sur les ADS, à l'aide de détecteurs dédiés (éprouvés ou innovants), certains instituts s'engagent plus particulièrement dans des mesures de sections efficaces de **capture** neutronique [67, 68] sur les actinides du cycle du thorium ou encore sur des produits de fission à vie longue.

Il a été prévu également d'étudier les réactions  $(n, xn)$  sur les noyaux du combustible ou des matériaux de structure des réacteurs innovants.

Enfin étaient prévues dans le contrat des mesures de sections efficaces de **fission** d'actinides du cycle du thorium [51] et d'actinides mineurs à incinérer [69]. Et c'est précisément dans le cadre de ces dernières propositions que se situe ce travail de thèse.

Un groupe de physique théorique est formé au sein de la collaboration, en vue d'évaluer les bases de données à partir des nouvelles mesures, en se basant sur la physique des noyaux. A la frontière de chacune de ces motivations, le groupe de physique théorique collabore étroitement avec les producteurs de ces nouvelles données nucléaires mesurées, en vue de les évaluer, pour les injecter dans les modèles élaborés pour décrire la structure nucléaire, et préciser les bases de données nécessaires aux simulations de réacteurs.

### 3.3 Description de l'installation

#### 3.3.1 le PS : Proton Synchrotron

Le faisceau de protons est extrait du synchrotron PS du CERN. En fonctionnement depuis 1960, ce synchrotron accélère des protons sur un anneau de 200 m de diamètre. Les protons sont accélérés jusqu'à atteindre 20 GeV/c.

Ils sont envoyés par paquets contenant entre  $10^{12}$  et  $10^{13}$  protons. Un super-cycle de 14,4 s se compose de plusieurs paquets (bunches ou cycles) de protons, séparés au minimum de 1,2 s (capacités du PS), soit jusqu'à 9 paquets.

Deux modes d'opération sont possibles [70] : le mode dédié à n\_TOF et le mode parasite.

Dans le mode dédié, un ou plusieurs paquets sont envoyés avec une intensité maximale vers n\_TOF ( $\approx 7 \cdot 10^{12}$  protons), tandis que dans le mode parasite, le faisceau est partagé avec les autres expériences du Hall Est (EAST-X) fournies par le PS, protons obtenus de manière plus souple donc en moindre quantité par paquets ( $\approx 4 \cdot 10^{12}$  protons).

Sur la figure 3.1, on peut observer deux exemples de supercycle en mode dédié ou parasite : plusieurs paquets de protons sont distribués par le PS en 14,4 s, dont un pour n\_TOF.

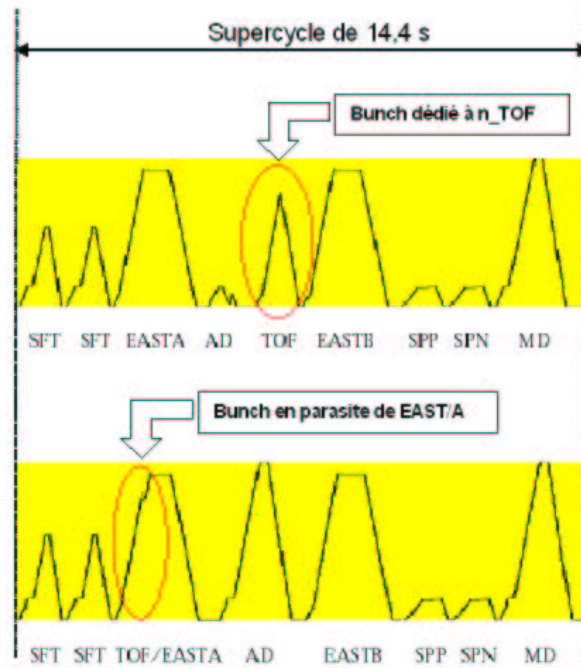


FIG. 3.1 – Deux exemples de supercycles de 14,4 s du PS : en haut le 5<sup>ème</sup> bunch de proton est dédié à n\_TOF, en bas, le 3<sup>ème</sup> bunch est partagé entre le hall est (EAST-A) et n\_TOF qui le parasite.

Pour nos mesures on ne souhaite pas descendre en dessous de 2,4 s entre 2 paquets pour que le système d'acquisition puisse purger les données vers les serveurs. Le nombre maximum de paquets acceptable par supercycle est lié également à la puissance maximale dissipée dans la cible de plomb et au niveau de radiation dans la zone de la cible. Un maximum de 5 bunches de protons par supercycle dédiés à n\_TOF est ainsi imposé.

L'étendue en temps de chaque bunch de proton est de 25 ns avec une r.m.s. de  $\Delta t_{\text{faisceau}} =$



6,75 ns.

### 3.3.2 Cible de spallation en plomb

Le plomb naturel (A.5) dominé par le  $^{208}\text{Pb}$ , doublement magique, a une grande masse atomique, une section efficace de diffusion élastique des neutrons importante et constante (libre parcours moyen des neutrons d'environ 3 cm), et une grande transparence aux neutrons de moins d'1 MeV, notamment. C'est donc un élément qui permet un haut taux de spallation (noyau lourd) pour un faible taux d'activation.

L'optimisation de la géométrie et de la taille de la cible s'est appuyée sur les critères suivants :

- flux intense de neutrons de distribution en énergie approchant celle de l'application étudiée. Un eV à plusieurs dizaines MeV pour un réacteur.
- résolution en énergie : incertitude sur les fluctuations du parcours de modération  $\Delta \lambda$  en accord avec les résonances à séparer pour les applications considérées.
- Dimensions, propreté (pas de halo ou de pénombre) et homogénéité du faisceau dans l'aire expérimentale.

La paramétrisation de la cible s'appuyant sur des travaux réalisés pour TARC avec les codes FLUKA [71] ou EAMC [72] a permis de faire varier les paramètres géométriques de celle-ci et d'étudier les distributions de neutrons obtenues.

La géométrie cylindrique a été déclarée optimale [61], mais n'a pu être qu'approchée, pour des raisons de difficultés d'usinage du plomb. Cependant les dimensions du cylindre optimisé ont été respectées : 40 cm de longueur et 80 cm de diamètre.

La cible de spallation a été montée en un assemblage de 9 blocs (un bloc : 30 cm  $\times$  30 cm  $\times$  60 cm de 600 kg de plomb) sur 3 étages de 3 blocs chacun. Le bloc central et celui du dessous sont creusés de 20 cm, ce qui ramène donc la cible à une longueur de 40 cm.

Les protons sont envoyés sur la face d'entrée ( $h \times l$ ) de ce parallélépipède de 55 cm ( $h$ )  $\times$  30 cm ( $l$ )  $\times$  40 cm ( $e$ ), dans le plan horizontal  $yz$  sur la figure 3.3, avec un angle de  $10^\circ$  par rapport à l'axe de symétrie du bloc complet. Cette incidence a été choisie en vue d'éliminer les particules chargées produites dans la cible et majoritairement projetées vers l'avant dans le cas d'une incidence normale du faisceau de protons. Cette incidence introduit une dissymétrie dans le profil faisceau selon la direction  $y$  (voir les projections du profil de faisceau simulé en fonction de l'énergie au paragraphe 3.4.3).

La puissance à évacuer dans la cible peut atteindre 10 000 W, pour un envoi de 5 paquets de  $7 \cdot 10^{12}$  protons en 14,4 s.

Coffré dans un support d'acier inoxydable, la cible est enfermée dans un container constitué d'un alliage d'aluminium rempli d'eau déminéralisée. Une circulation d'eau est effectivement



FIG. 3.2 – Photo de l'assemblage de blocs de plomb de la cible de spallation.

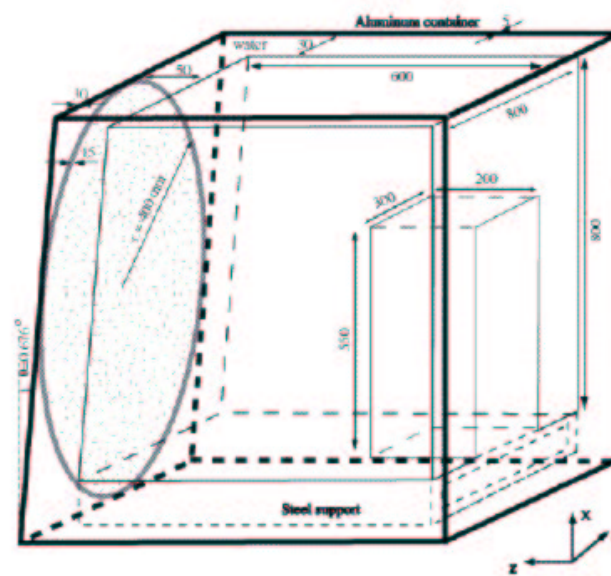


FIG. 3.3 – Géométrie de la cible de spallation utilisée dans les simulations.

nécessaire à la dissipation de la chaleur, de manière à maintenir la cible à 50°C en conditions d'utilisation et à éviter qu'elle ne dépasse les 140 degrés (la température de fusion du plomb est d'environ 330°C). Au taux maximum de protons admis, on a vérifié [73] qu'elle ne dépassait pas 90°C. Les neutrons produits par la cible de spallation ont des énergies supérieures à quelques centaines de keV. L'eau de refroidissement joue donc également le rôle de modérateur de neutrons, et permet ainsi d'étendre le spectre vers les énergies plus grandes, une mauvaise résolution rendant les données inexploitable en dessous de 0,7 eV environ.

La fenêtre circulaire (20 cm de diamètre) d'entrée des protons d'une épaisseur de 2mm est placée à 30 mm du plomb, ce qui représente donc l'épaisseur d'eau à l'entrée. A la sortie de la cible, l'épaisseur d'eau est de 5 cm entre la face de sortie du plomb et une fenêtre circulaire (diamètre 80 cm) d'épaisseur 1,5 mm, résultat d'un compromis entre solidité et transparence<sup>4</sup> [74]. L'ensemble est légèrement incliné (0.676° par rapport à la verticale ou 1.16 % par rapport à la partie horizontale du tunnel) pour adapter le montage au tube de sortie des neutrons. On trouvera une description détaillée de la cible, des supports et containers, assortis des exigences de sécurité dans la référence [75].

Les caractéristiques de la cible ayant un impact sur la définition du faisceau de neutrons ont fait l'objet de simulations [76], permettant de caractériser le flux de neutrons sortant, et d'optimiser la disposition des éléments que nous décrivons dans le paragraphe suivant. On parlera d'éléments "optiques" de l'installation, dans la mesure où l'on peut assimiler la trajectoire d'un neutron à celle d'un rayon lumineux, transporté dans un tube. Un neutron de faible énergie peut être réfléchi par la paroi du tube si sa trajectoire n'est pas parallèle au tube. Après une description des différents éléments, nous verrons les propriétés du faisceau de neutrons en salle de mesure, prévues par simulation, puis étudiées lors de l'ouverture de l'installation n\_TOF (période du Commissioning paragraphe 3.5)

### 3.3.3 Temps de vol dans le tube à vide, éléments optiques

A l'intérieur des tubes alignés, un vide primaire peut être établi. Leur diamètre diminue le long des 200 m de longueur dans le tunnel. Ils constituent le chemin de vol des neutrons, représenté dans son ensemble sur la figure 3.4. Collimateurs et blindages adaptés optimisent la forme du faisceau en salle expérimentale, nous les décrivons brièvement dans les paragraphes suivants.

---

<sup>4</sup>vis à vis de la diffusion et de l'absorption des neutrons

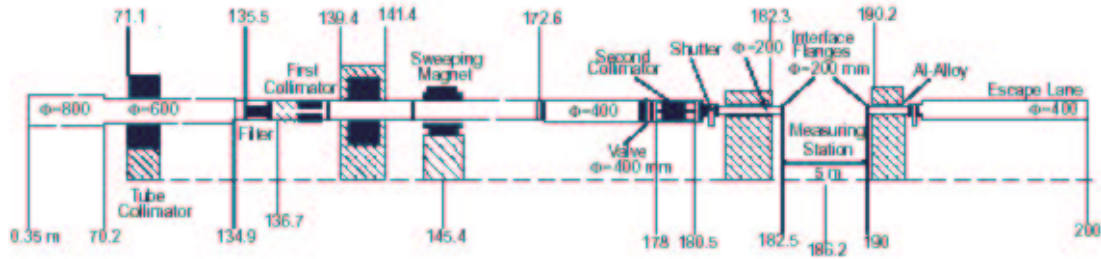


FIG. 3.4 – Vue générale du tube de TOF jusqu'à la fin du tunnel TT2.

**La zone primaire** Les premiers 140 m à partir du centre de la cible de spallation<sup>5</sup> présentent deux réductions. Un premier blindage en béton, situé à une quinzaine de mètres de la cible, a été ajouté à la première configuration suite à la campagne 2001 de caractérisation (3.4.8) pour diminuer le flux de neutrons parasites (produits en dehors de la cible) à l'entrée de cette zone.

Après la première réduction, un blindage en fer entouré de béton s'étend sur 2,4 m, suivi d'un filtre<sup>6</sup> à 135.5 m escamotable, et du premier collimateur situé à 136,7 m. Ce dernier permet d'atténuer le bruit de fond prévu par simulation, provoqué par les neutrons externes<sup>7</sup>. Son diamètre intérieur est de 11 cm. On l'appelle Source Screening Collimator ou SSC, car il doit écranter la cible de plomb.

**La zone secondaire** Afin de dévier les particules chargées résiduelles accompagnant le faisceau de neutrons dans le tube de 40 cm de diamètre, un aimant de balayage<sup>8</sup> dont on trouvera description et caractéristiques dans la référence [75], est situé 145 m après la cible. Ensuite, deux blindages, l'un en fer de 2 m de long et l'autre de 3 m de béton ont également été ajoutés suite à la campagne de caractérisation précédemment citée pour s'affranchir d'un bruit de fond gamma qui s'est révélé essentiellement dû aux muons (voir le paragraphe 3.4.8). A 175 m, une vanne et le deuxième collimateur se suivent. Puis le diamètre du tube, composé alors d'alliage d'aluminium, se réduit à 20 cm.

La collimation se règle en fonction des souhaits de diamètre de faisceau dans l'aire expérimentale qui dépend des expériences envisagées : l'ouverture du deuxième collimateur doit donc pouvoir être modifiée (1 jour d'arrêt). Ce collimateur est appelé Beam Shaping Collimator ou

<sup>5</sup>toutes les longueurs sont données à partir du centre de la cible.

<sup>6</sup>utilisé dans certaines expériences pour des calibrations.

<sup>7</sup>réduction du nombre de neutrons heurtant le second collimateur et le tube.

<sup>8</sup>en anglais le sweeping magnet.

BSC. Son rayon et sa position entre source et échantillon<sup>9</sup> conditionnent, par des considérations géométriques, le rayon du faisceau au niveau de l'échantillon. On a  $D_c = 1,8$  cm pour le mode capture, et  $D_f = 8$  cm pour le mode fission. Les paramètres des collimateurs sont répertoriés dans la référence [77] ou encore sur le site internet de la collaboration [78] et pour plus d'informations sur la conception (position, composition) des collimateurs voir les rapports [79, 80, 81].

Dans ces deux zones, un vide de l'ordre de  $10^{-2}$  mbar est obtenu dans les tubes.

**L'aire expérimentale** L'aire expérimentale s'étend à partir de 182.5 m après la cible sur 7.5 m après une chicane en béton de 3,2 m d'épaisseur. L'interface avec les détecteurs est assurée par des brides de 20 cm de diamètre associées chacune à une vanne. Ces vannes sont automatiquement fermées en cas d'accès en zone, mais leur fermeture doit être contrôlée avant une mesure. Le vide maintenu en zone expérimentale se situe entre  $1,4 \cdot 10^{-1}$  et  $3 \cdot 10^{-2}$  mbar. Jusqu'en 2003, les détecteurs et échantillons sont installés le long du tube maintenus par des supports s'appuyant sur un faux plancher<sup>10</sup>. L'ensemble du matériel associé aux détecteurs (électronique, pompes, régulations, PC de contrôle, câbles, fibres optiques pour le transfert des données...) s'y trouvaient, et a été déplacé près de la ligne d'échappement à partir de la campagne 2003, pour des impératifs de sécurité.

### 3.3.4 Ligne d'échappement des neutrons

Au delà de 190 m, un bloc de béton ferme en chicane l'aire expérimentale, et une vanne délimite alors la ligne d'échappement. Les neutrons du faisceau sont arrêtés au bout de 10 m dans une masse de matière essentiellement composée d'hydrogène, dans lequel la rétrodiffusion est limitée. Ici, le vide est de l'ordre du mbar.

Une vue générale de l'installation est représentée sur la figure 3.5 : on observe la position relative des éléments décrits plus haut : le PS, le tunnel où se propagent les neutrons, la cible de plomb, le tunnel de vol des neutrons d'une longueur totale de 200 m, et l'aire expérimentale.

Conçue pour allier flux intense et bonne résolution avec un minimum de bruit de fond, l'installation n\_TOF a été, comme nous l'avons déjà dit, soigneusement simulée (voir paragraphe 3.3), dans le but d'optimiser (géométrie de la ligne) ces caractéristiques. Une phase de "commissioning" de l'installation s'est déroulée à la mise en service de la ligne, permettant une validation expérimentale des caractéristiques attendues. Nous voulons préciser ici tout d'abord la définition des grandeurs, et ensuite en décrire les valeurs obtenues.

Comme le rappellent les auteurs de la référence [82], à laquelle nous nous référons largement

<sup>9</sup>c'est à dire l'échantillon cible placé sous faisceau et sur lequel on effectue les mesures.

<sup>10</sup>le tunnel remonte dans cette partie.

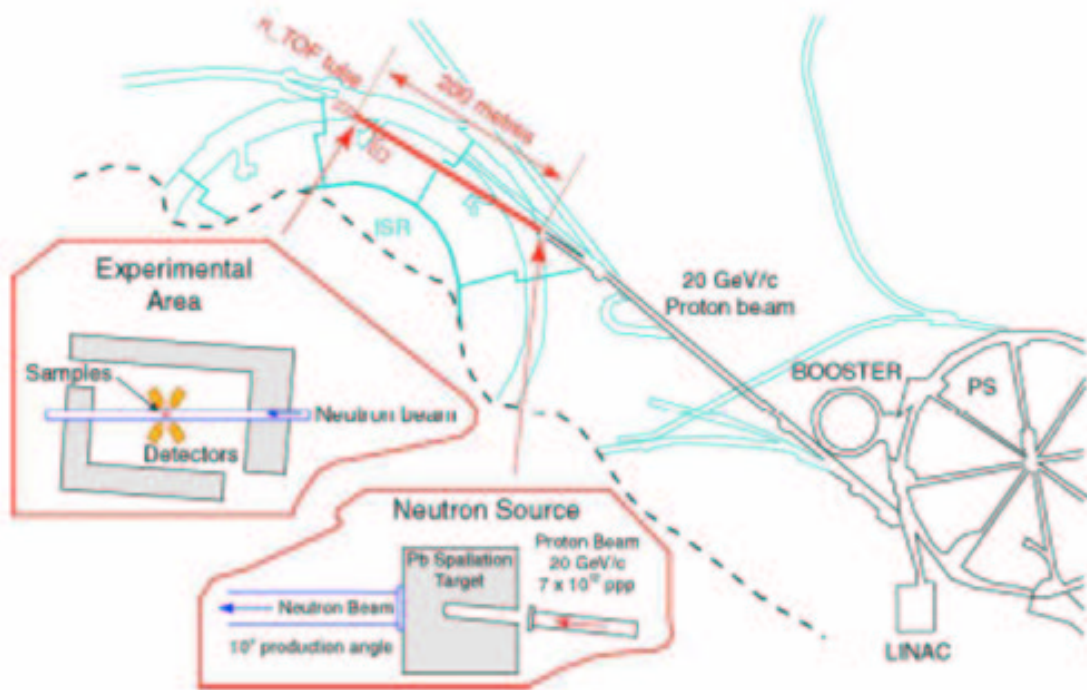


FIG. 3.5 – Vue générale de l'installation n\_TOF : du synchrotron à l'aire expérimentale.

dans cette partie, l'installation n\_TOF n'est pas un spectromètre de temps de vol traditionnel (protons de 20 GeV, neutrons modérés), et nécessite un traitement approprié, et une nouvelle définition de la figure de mérite (F.O.M.) que nous avons mentionnée plus haut.

La distribution simulée en fonction de l'énergie des neutrons, et la distribution spatiale en zone expérimentale au niveau des échantillons sont celles auxquelles nous nous référerons pour comparer ou corriger nos résultats expérimentaux. L'énergie en fonction du temps et la résolution accessible sur l'énergie des neutrons sont des paramètres indispensables à la démonstration de l'adéquation de l'installation aux objectifs visés.

Décrivons donc brièvement les différents résultats obtenus, tout d'abord par simulation, puis précisés expérimentalement au cours de la campagne de caractérisation du printemps 2001 [63].

### 3.4 Simulations, performances attendues

#### 3.4.1 La corrélation temps-énergie

Le temps de vol  $T_{TOF}$  est le temps mis par le neutron pour parcourir la longueur entre sa source et la zone expérimentale. Comme dans toute expérience de ce type, pour extraire l'énergie cinétique du neutron à partir du temps de vol, on utilise la formule valable classiquement pour des énergies inférieures à quelques MeV :

$$E_n = \frac{1}{2}mv_n^2 \quad (3.1)$$

dans laquelle la vitesse  $v_n$  du neutron sortant de la cible et tout le long du tube (sous vide) est donnée par

$$v_n = \frac{L_{geom}}{T_{TOF}} \quad (3.2)$$

où  $L_{geom}$  est la longueur géométrique parcourue par le neutron entre la sortie de la cible et l'échantillon mesuré.

L'évaluation relativiste de l'énergie en fonction du temps est valable sur l'ensemble du domaine en énergie considéré et s'écrit :

$$E_n = (\gamma - 1)m_n \times c^2 \quad (3.3)$$

avec

$$\gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - \beta^2}} \quad (3.4)$$

et

$$\beta = \frac{v_n}{c} = \frac{L_{geom}}{c \times T_{TOF}} \quad (3.5)$$

La représentation théorique de l'énergie en fonction du temps à une distance donnée d'environ 185 mètres (figure 3.6) permet de se faire une bonne idée des équivalences entre temps et énergie obtenue sur l'installation.

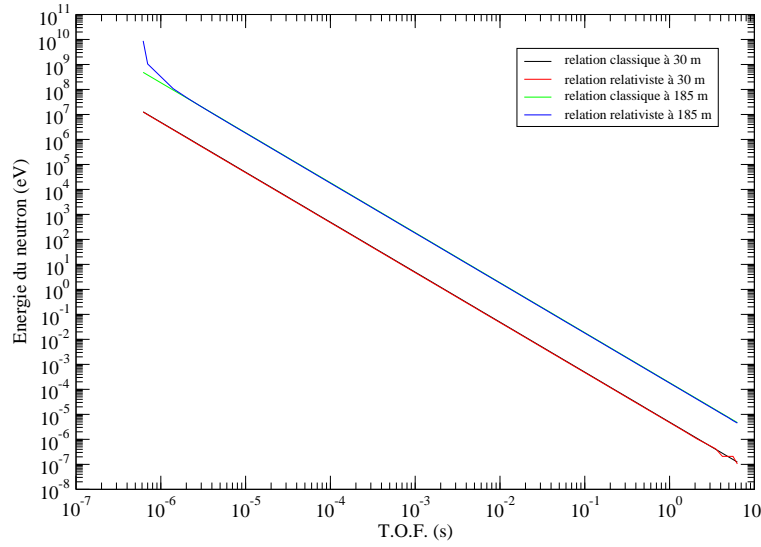


FIG. 3.6 – Relation temps - énergie théoriques des neutrons à 2 distances de vol (30 m - hypothétiques et 185 m) de la cible de n\_TOF.

La corrélation temps-énergie obtenue par les simulations est représentée sur la figure 3.7.

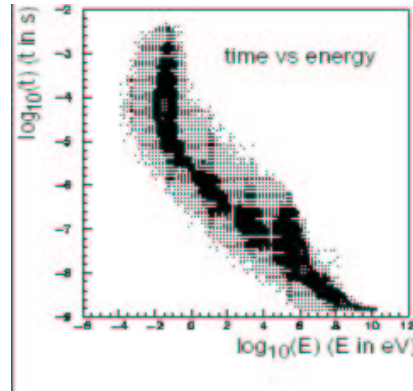


FIG. 3.7 – Relation temps-énergie simulée [79] des neutrons de spallation en sortie de cible.

Il est théoriquement possible d'obtenir des neutrons d'énergie allant jusqu'à 20 GeV. Ce qui correspond à des temps inférieurs à la microseconde.



La limite inférieure théorique est conditionnée par la chute due à la gravitation (coupure gravitationnelle) subie par les neutrons d'énergie cinétique inférieure à 20 meV, dont la déviation empêche alors la détection. La répartition simulée des neutrons en fonction de l'énergie montre la possibilité d'obtenir un grand nombre de neutrons d'énergie inférieure à 1 eV. Mais, comme on le voit sur la figure 3.7, leur corrélation temps - énergie est mauvaise. Pour cette raison nous choisirons une énergie minimale d'environ 0,7 eV. Ce qui permet de conditionner les dimensions de la fenêtre en temps de l'acquisition ne dépassant pas 16 ms (voir figure 3.6). On peut alors choisir la mémoire nécessaire du dispositif d'acquisition et la fréquence d'échantillonnage.

En réalité sur n\_TOF, comme les neutrons sont issus de la spallation dans un large bloc de plomb, le temps de vol  $T_{TOF}$  n'est pas directement accessible à la mesure : le temps  $t_{mes/PS}$  est mesuré après déclenchement associé au faisceau de protons en amont de la cible. Le neutron, lui, est créé au coeur de la cible et passe un certain temps, très variable, dit de modération dans l'ensemble cible - eau, ce temps est noté  $t_{mod}$ . Sa vitesse  $v_n$  en sortie de cible dépend de ce temps, et est également très variable. Si l'on réécrit la vitesse du neutron en utilisant ces données :

$$v_n = \frac{L_{geom}}{T_{TOF}} = \frac{L_{geom}}{t_{mes/PS} - t_{mod}} \quad (3.6)$$

en supposant que le temps de modération est très inférieur au temps mesuré, on écrit avec un développement limité :

$$v_n = \frac{L_{geom}}{t_{mes/PS}(1 - \frac{t_{mod}}{t_{mes/PS}})} = \frac{L_{geom}(1 + \frac{t_{mod}}{t_{mes/PS}})}{t_{mes/PS}} \quad (3.7)$$

et avec :

$$t_{mes} \approx T_{TOF} \quad (3.8)$$

on a :

$$v_n = \frac{L_{geom}(1 + \frac{t_{mod}}{T_{TOF}})}{t_{mes/PS}} = \frac{L_{geom} + \frac{L_{geom} \times t_{mod}}{T_{TOF}}}{t_{mes/PS}} \quad (3.9)$$

où l'on reconnaît la vitesse du neutron en sortie de cible :

$$v_n = \frac{L_{geom}}{T_{TOF}} \quad (3.10)$$

soit

$$v_n = \frac{L_{geom} + v_n \times t_{mod}}{t_{mes/PS}} \quad (3.11)$$

Le produit  $v_n \times t_{mod}$  a la dimension d'une longueur, que l'on peut associer à une longueur du parcours de modération et on la note  $\lambda$  :

$$v_n = \frac{L_{geom} + \lambda}{t_{mes/PS}} \quad (3.12)$$

Cette distance ne varie pas trop d'un temps à l'autre, donc d'une énergie à l'autre. Elle permet donc un traitement simplifié de la normalisation en énergie.

La longueur de vol effective  $L_{eff}$  du neutron le long du tube correspond à la combinaison de la longueur de vol géométrique entre la face de sortie du coffrage de la cible et la position de l'échantillon, avec la longueur du parcours de modération du neutron dans la matière.

Cette longueur n'est pas accessible pour un neutron particulier, mais une simulation, basée sur un traitement statistique, permet d'obtenir une distribution de distance de modération  $\lambda$  centrée pour une énergie donnée de neutron autour d'une valeur moyenne  $\lambda_0$ , avec une largeur  $\Delta\lambda$  dite fluctuation sur le parcours de modération du neutron d'énergie  $E_n$ .

Entre 1 et 100 keV (domaine principalement étudié dans [83]), la distance de modération varie comme la racine carrée de l'énergie. On observe l'évolution de cette valeur simulée, qui varie entre 5 et 50 cm, sur la figure 3.8 :

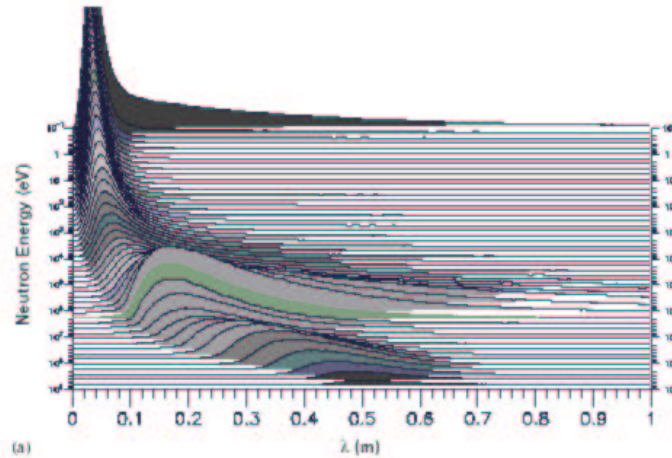


FIG. 3.8 – Distribution Monte Carlo [84] du parcours des neutrons dans le modérateur en fonction de l'énergie.

### 3.4.2 Résolution en énergie et fonction de résolution

Une bonne résolution en énergie, notamment dans le domaine des résonances, conditionne la capacité à séparer en énergie des résonances étroitement espacées.

La résolution totale en énergie  $\frac{\Delta E}{E}$  associée à l'expérience de temps de vol résulte de la combinaison de 3 termes :

- la résolution associée à l'étalement en temps du faisceau de protons initial.
- la résolution associée à l'incertitude sur la longueur de parcours de modération des neutrons.

- la résolution associée au système de détection. Cette dernière fait référence à la contribution du système de détection à la résolution. On en découvrira les variations dans nos mesures en étudiant précisément le détecteur et en menant l'analyse des données collectées dans les chapitres suivants.

Intéressons nous aux deux premiers points :

- **Résolution associée à l'étalement en temps du faisceau de protons**

Le PS fournit, on l'a vu un paquet de protons, dont le temps d'arrivée est compris dans une distribution de largeur  $\Delta t_{faisceau} = 7$  ns.

- **Résolution associée à l'incertitude sur la longueur de parcours de modération des neutrons**

Un neutron d'énergie donnée en sortie de la cible de plomb (en entrée du tube, donc) est supposé avoir passé un certain temps dans l'ensemble cible-modérateur, ainsi, comme nous l'avons montré plus haut, son parcours est virtuellement augmenté de la longueur de son chemin de modération  $\lambda$ . Prendre en compte le parcours de modération revient ainsi à introduire une distance artificielle de parcours, entre un neutron source virtuel situé à une distance  $\lambda$  de la face de sortie du modérateur, avec une incertitude  $\Delta\lambda$  "émettant" le neutron d'énergie  $E$  en sortie de modérateur, et récupéré au niveau de l'échantillon. La résolution en énergie associée est donnée par :

$$\frac{\Delta(E)}{E} = 2 \times \frac{\Delta\lambda}{\lambda + L_{geom}} \quad (3.13)$$

Plus la longueur de vol des neutrons est grande, meilleure est la résolution en énergie.

Dans le plomb, elle est essentiellement indépendante de l'énergie entre 1 eV et 10 keV, où s'ouvrent les canaux de réactions inélastiques.

La présence des 5 cm d'eau autour de la cible de plomb réduit l'incertitude liée au parcours de modération, en effet, la vitesse étant réduite singulièrement dans l'eau, l'incertitude sur le parcours de modération, proportionnelle à cette vitesse, et à l'incertitude sur le temps de modération ( $\lambda = v_n \times t_{mod}$ ), est donc réduite, la fluctuation sur le temps de modération restant quasi-inchangée en raison de la faible épaisseur d'eau. Une bonne résolution en énergie étant associée à une petite valeur de l'incertitude sur le parcours de modération, la présence du modérateur est donc facteur d'amélioration de la résolution en énergie de l'installation.

Le résultat des simulations donnant une estimation des deux contributions aux valeurs de  $\Delta\lambda$  et de  $\frac{\Delta(E)}{E}$  correspondant est représenté sur la figure 3.9

La résolution est dominée par l'incertitude sur la longueur de parcours de modération des neutrons avant 1 MeV, puis la résolution due à la largeur en temps du faisceau de proton domine.

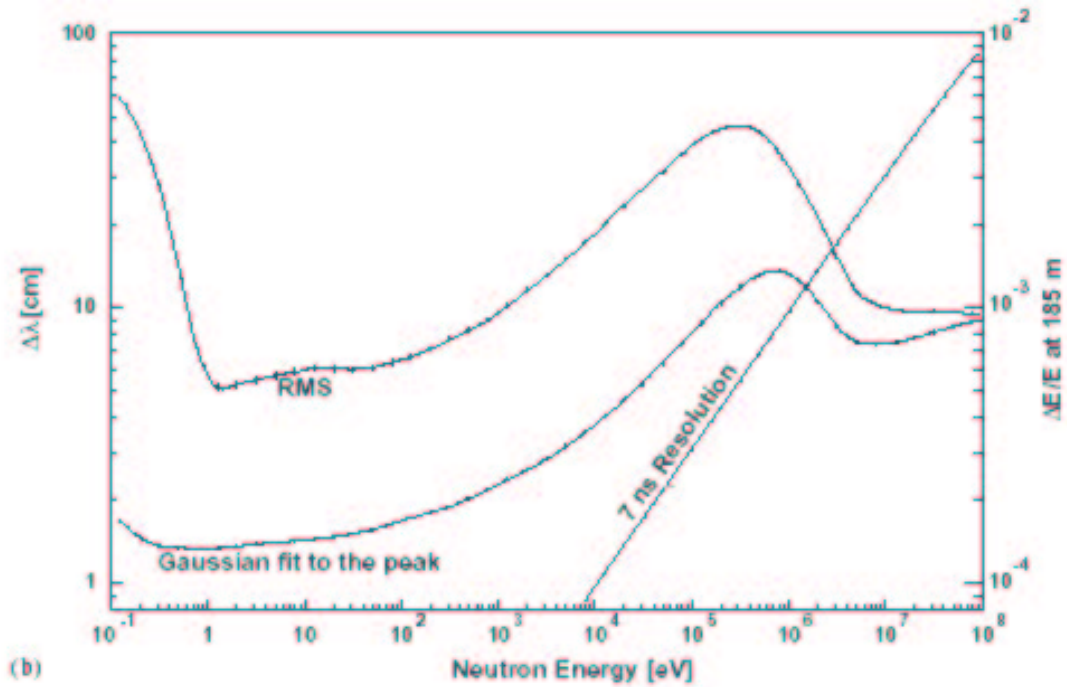


FIG. 3.9 – Simulation de la résolution en énergie à 185 m. La composante associée au faisceau introduit une incertitude relative inférieure à celle introduite par l'incertitude sur la longueur de modération jusqu'à 1 MeV. Cette incertitude peut être calculée de plusieurs façons : la RMS la surestime par rapport à la déviation standard d'un ajustement gaussien du pic représentant la longueur de modération (voir figure 3.8).

La résolution  $\frac{\Delta(E)}{E}$  simulée est donc inférieure à  $10^{-3}$  entre 1 eV et 1 keV, présente des valeurs très supérieures avant 0.5 eV et un maximum à  $5 \cdot 10^{-3}$  autour de 100 keV.

### 3.4.3 Le profil du faisceau de neutrons en fonction de l'énergie

Si la surface de l'échantillon étudié est plus grande que la tache faisceau à l'endroit où il est placé, alors on peut intégrer le flux de neutrons sur toute cette surface, et se contenter de dire que tous les neutrons d'un domaine d'énergie sont interceptés. En revanche, si l'échantillon présente au faisceau une surface plus petite, il faut en principe tenir compte de la proportion de neutrons interceptée par domaine d'énergie. Ainsi la proportion interceptée de neutrons de haute énergie, majoritairement concentrés au centre de l'échantillon est plus importante que celle de neutrons de basse énergie, qui sont plus étalés spatialement, et peuplent tout l'échantillon. A une certaine distance, la taille du faisceau est fixée, mais le profil du faisceau à ce niveau présente une dépendance en énergie, en raison de la distribution spatiale des neutrons en sortie du plomb.

En outre, plus l'échantillon est placé loin du collimateur 2 (BSC), plus son profil s'élargit, on observe cette tendance sur la figure 3.10.

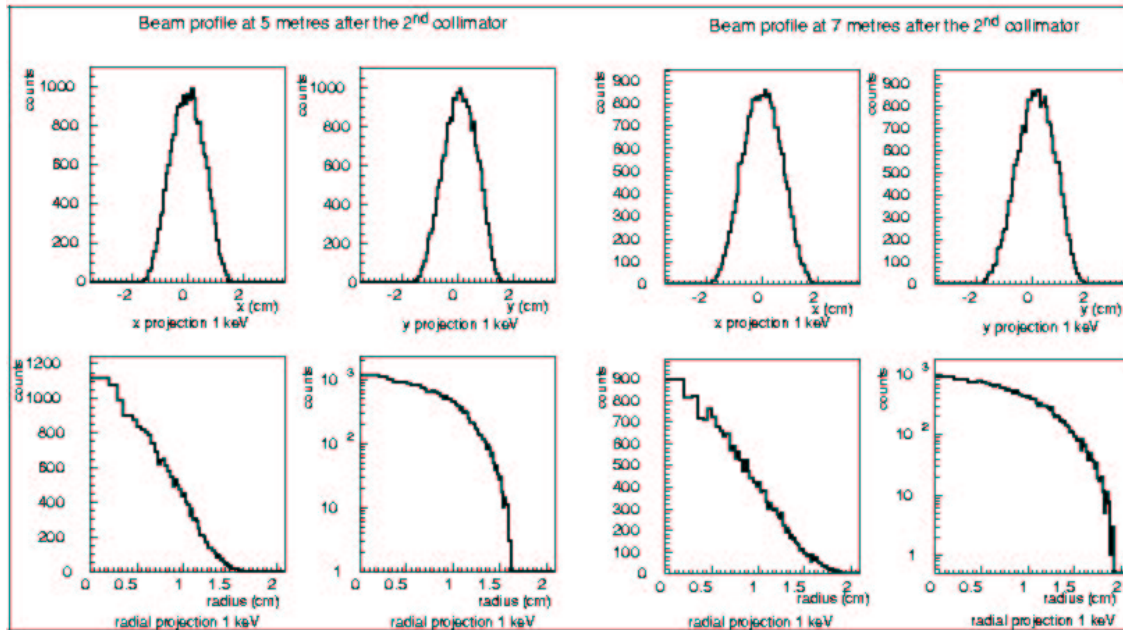


FIG. 3.10 – Projections du profil simulé du faisceau en mode capture (2 cm de diamètre) pour des neutrons de 1 keV à 5 et 7 m à la sortie du collimateur BSC (180 m après la cible) [77].

### 3.4.4 Le flux de neutrons

Les simulations préliminaires visant à optimiser la géométrie de la cible de plomb, dont nous avons cité les références précédemment, ont permis d'estimer dans un premier temps le nombre de neutrons en sortie de cible, c'est à dire entrant dans le tube, puis en zone expérimentale après transport dans le tube, avec ou sans traversée du système de collimation.

Performance essentielle de la ligne, permettant d'évaluer outre les performances de l'installation, le taux de comptage, la sécurité, la dimension des cibles et qui va permettre de calculer les sections efficaces absolues. C'est, avec la résolution en énergie, ce qui est optimisé dans le cas de l'installation n\_TOF, et qui intervient dans la figure de mérite (F.O.M.).

Commençons par revenir sur la notion de flux<sup>11</sup>, dont la définition se doit d'être précise : Par définition, le flux instantané (d'où l'expression taux de fluence) de projectiles peut s'écrire, par unité de surface :

$$\Phi(E) = \frac{dN_{proj.}(E)}{dSdt} \quad (3.14)$$

ou par unité d'angle solide

$$\Phi(E) = \frac{1}{l^2} \times \frac{dN_{proj.}(E)}{d\Omega dt} \quad (3.15)$$

où  $l$  est la longueur parcourue par les neutrons. Plus cette distance est grande, plus le flux s'atténue.

Si l'on intègre sur 1 s ce taux, on obtient alors la fluence, qui s'exprime en nombre de neutrons par  $cm^2$  et par seconde ( $n.cm^{-2}.s^{-1}$ ). En pratique pour l'installation n\_TOF, on parlera du nombre de neutrons par paquet de protons incidents, estimé à un nombre moyen de  $7 \cdot 10^{12}$  protons. L'unité de flux deviendra alors :  $n.cm^{-2}/(7 \cdot 10^{12} \text{ protons})$  (les différentes unités de temps et leurs correspondances sont rappelées dans la partie A.7 des annexes). La normalisation au nombre de protons nous semble être la plus judicieuse, elle permet en effet de s'affranchir de l'hypothèse du nombre de protons par super-cycle et permet une comparaison entre les expériences menées sur l'installation sans ambiguïté. Cependant les structures en temps des faisceaux diffèrent d'une installation à l'autre, aussi pour comparer les flux par unité de temps, on parlera également de flux par seconde. Le flux dépend de la distance  $l$  à laquelle on mesure le flux. Aussi est-il judicieux de s'intéresser à la **brillance** de la source, donnée comme le produit :

$$\text{brillance} = l^2 \times \Phi(E) \quad (3.16)$$

---

<sup>11</sup>le terme "flux" est usuel mais impropre, il a été remplacé par le terme "débit de fluence", la fluence  $\frac{dN}{dS_{\perp}}$  étant toujours supérieure au "courant"  $\frac{dN}{dS} = \frac{dN \cos \theta}{dS_{\perp}}$  de particules, qui dépend, lui, de la surface  $dS$  faisant l'angle  $\theta$  avec  $dS_{\perp}$  et qui correspond à un comptage de nombre de particules traversant la surface considérée (voir sur ce sujet l'appendice de la note [85] et [59]). Nous n'aurons pas à envisager la distinction dans la suite puisque les cibles seront placées perpendiculairement au faisceau.

et qui s'exprime en nombre de neutrons par stéradian et par seconde ( $n.sr^{-1}.s^{-1}$ ). C'est le nombre total de neutrons sortant de la cible de spallation par unité d'angle solide, indépendante de la longueur de vol, cette grandeur est utile notamment pour comparer les installations (voir le paragraphe suivant 3.6.1).

Il est fort dangereux d'écrire les flux avec les notations  $\phi$  et  $\Phi$ , sans tenir compte de l'unité d'énergie utilisée. On trouvera le plus souvent dans la littérature n\_TOF, le flux exprimé en unités isoléthargiques, cependant encore une fois pour des raisons de commodités de comparaison, ou d'habitude, on pourra trouver les autres unités.

Le flux de neutrons est une fonction de l'énergie cinétique  $E$  de ces neutrons, et en pratique, on pourra estimer le nombre de neutrons d'énergie comprise entre l'énergie  $E$  et l'énergie  $E + dE$ , mais il sera courant de représenter la distribution en unités isoléthargiques  $\frac{dn}{d\ln E}$  ou  $\frac{dn}{d\log E}$  de neutrons. (Les relations entre ces formulations sont détaillées dans la partie A.7 de l'annexe A.7)

On voit qu'il est très important de se poser les bonnes questions en observant une représentation du "flux" de neutrons :

- simulé ou expérimental (préliminaire ? quelles corrections ? quelles normalisations) ?
- à quelle distance de la cible ?
- avec ou sans système de collimation ? S'il y a différents modes<sup>12</sup>, lequel ?
- unité de temps, ou de nombre de protons ?
- unité d'énergie (intervalles d'énergie, intervalles isoléthargiques) ?
- unité de surface : flux intégré sur une surface (celle de l'échantillon, par exemple) ?

### 3.4.5 Distribution en énergie des neutrons

Le spectre en énergie des neutrons rend compte de la proportion du nombre de neutrons attendu en fonction de leur énergie dans  $1\text{ cm}^2$ , pris en sortie de cible (précisément après la couche d'eau modératrice et la fenêtre d'aluminium) ou en zone expérimentale, à environ 200 m du centre de la cible. Sensiblement les mêmes dans les deux cas **en l'absence de collimation**, ces spectres montrent un écart pour des énergies supérieures à 1 MeV, on repère en outre dans les distribution simulées reproduites sur la figure 3.11, 4 zones identifiées dans le tableau 3.1 :

Cependant, sur l'ensemble des neutrons sortant de la cible, seule une petite partie (correspondant à l'angle solide formé par le tunnel et la surface de l'échantillon :  $\Delta\Omega = 6 \cdot 10^{-6}$ ) des neutrons atteint l'aire expérimentale, soit environ 1 pour  $10^7$ .

---

<sup>12</sup>on a déjà souligné l'existence de 2 modes pour les campagnes de mesures étudiées ici : le mode capture collimateur  $2 \otimes 2\text{ cm}$  et le mode fission collimateur  $2 \otimes 8\text{ cm}$ .

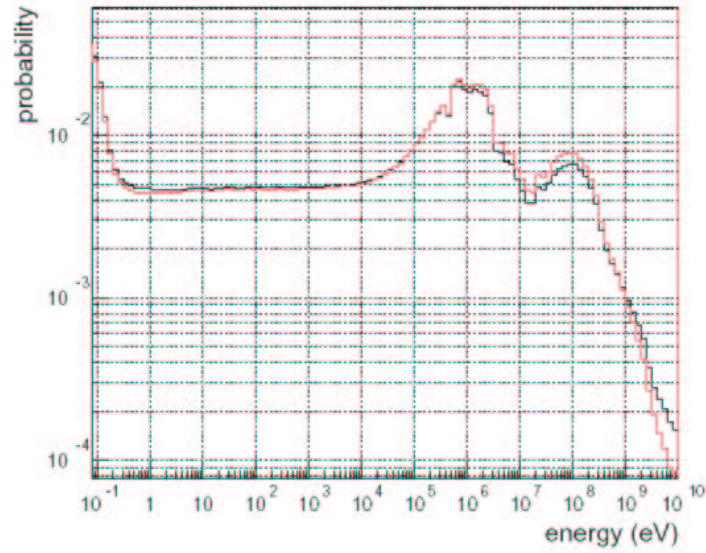


FIG. 3.11 – Distribution en énergie (normalisée à une surface unité) des neutrons en sortie de cible, juste après la couche d'eau modératrice en noir et au niveau de la station de mesure en rouge [76].

Proportion (%)	Intervalle d'énergie
38%	0 eV - 0.3 eV
23%	0.3 eV - 20 keV
32%	20 keV - 20 MeV
7%	20 MeV - 20 GeV

TAB. 3.1 – Répartition en énergie des neutrons du faisceau de n\_TOF en l'absence de collimation.



### 3.4.6 Variation du flux en fonction de l'énergie

Intéressons nous tout d'abord au nombre de neutrons émis par proton incident de 20 GeV par la cible dans toute la sphère qui l'entoure d'angle solide  $4\pi$  : c'est le nombre de neutrons émis par toute la cible dans tout l'espace. Une première estimation issue des premiers calculs ([77] paragraphe 1.3) menés sur la cible est de 275 neutrons par proton incident.

Le résultat de la simulation (à l'aide du "générateur d'évènements" : cible FLUKA EAMC, modérateur FLUKA-CAMOT, ayant permis la paramétrisation de la source étendue de neutrons) du flux non collimaté en zone expérimentale (à 185 m du centre de cible) est reporté figure 3.12. Exprimé en unités isoléthargique et par paquet de proton de  $7 \cdot 10^{12}$ , en dessous de 0,5 eV, un pic de neutrons lents est composé de neutrons qui ont été ralentis dans la cible et l'eau. En dessous de 0,1 eV, on observe la coupure gravitationnelle. La partie plate entre 1 eV et  $10^4$  eV reflète le caractère isoléthargique du flux, apporté par la modération due à l'eau. La variation du flux par unité d'énergie ( $\frac{dn}{dE}$ ) se rencontre dans un rapport non publié [86]. Entre 1 eV et 10 keV, sa variation est sensiblement linéaire. Autour du MeV, un pic de neutrons peut être observé, ce sont les neutrons d'évaporation, dont nous avons donné la distribution en décrivant le processus de spallation. Les creux qui apparaissent à diverses énergies correspondent aux résonances d'absorption dans les matériaux sur le chemin des neutrons : l'aluminium de la fenêtre entre la cible et le tube (6 keV, 40 keV, 90 keV, 150 keV), l'oxygène de l'eau de modération (400 keV, 1 MeV).

La grandeur  $L^2 \times \frac{dn}{dE}$  quantification du nombre de neutrons par unité d'angle solide émis par la source est, on l'a vu, pratique pour comparer les installations entre elles. Sa variation en fonction de l'énergie suggère aux auteurs une paramétrisation analytique de la brillance, dans le domaine d'énergie compris entre 3 eV et 10 keV :

$$L^2 \times \frac{dn}{dE} = 9,15 \cdot 10^{11} \times E^{-0,97} \quad (3.17)$$

Pour prendre en compte le **système de collimation** dans les simulations du flux en zone expérimentale, il s'agit de calculer un facteur de transmission associé aux collimateurs. En s'appuyant sur la description des collimateurs et de leur rôle dans le parcours des neutrons, on obtient la variation du facteur de transmission simulé associé aux systèmes de collimation en mode capture et fission.

### 3.4.7 Flux intégré sur toutes les énergies

Le flux intégré sur le spectre donne une idée de la valeur du flux intégré de neutrons à 200 m de la cible : ainsi **en l'absence de collimation**, on attend [76] fig. 2.1 le flux intégré sur tout

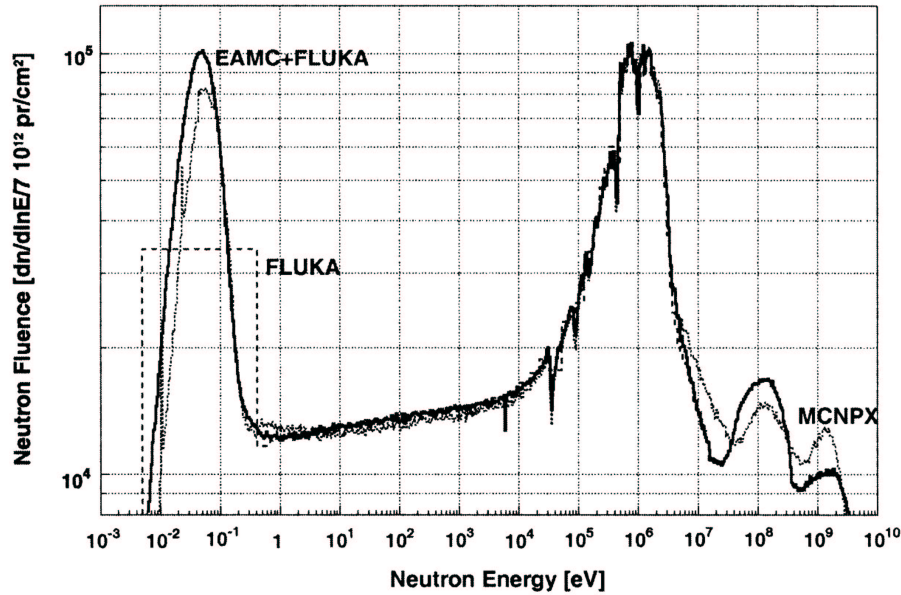


FIG. 3.12 – Flux de neutrons simulé avec différents codes associés ou non [73] sans collimateurs à 200 m.

le spectre en énergie :  $2.7 \cdot 10^6$  neutrons/cm<sup>2</sup>/pulse de  $2,8 \cdot 10^{13}$  protons (pour  $R=40$  cm et  $h = 40$  cm)), ce qui correspond à  $7 \cdot 10^5$  neutrons/cm<sup>2</sup>/bunch de  $7 \cdot 10^{12}$  protons.

#### 3.4.8 Le bruit de fond

La contamination par les particules qui accompagnent les neutrons a été prévue par simulation. Les différentes particules susceptibles de contaminer le faisceau de neutrons sont kaons, pions, protons, muons, électrons et photons. La plupart des particules chargées sont déviées par l'aimant de déviation situé à 145 m. Un traitement particulier est fait sur les photons, qui sont source principale de bruit de fond sur les expériences de capture, basées sur la détection de gammas secondaires.

### 3.5 Campagne de caractérisation expérimentale du faisceau de neutrons

La première période de caractérisation a commencé en Novembre 2000 et s'est poursuivie en Avril 2001, elle a été menée à bien par le groupe EET du CERN, chargé ainsi de valider les simulations précédentes, qu'il a d'ailleurs en partie menées.

Dans la continuité de cette campagne, des détecteurs développés par les différentes équipes ont pu être installés sous faisceau, suivant ainsi plusieurs objectifs complémentaires : caractériser le détecteur lui-même et son comportement sous le faisceau de n\_TOF, et apporter des précisions, ou des résultats complémentaires concernant le faisceau de neutrons [63, 87].

Sur la figure 3.13, on peut observer une représentation de la salle expérimentale en 2001.

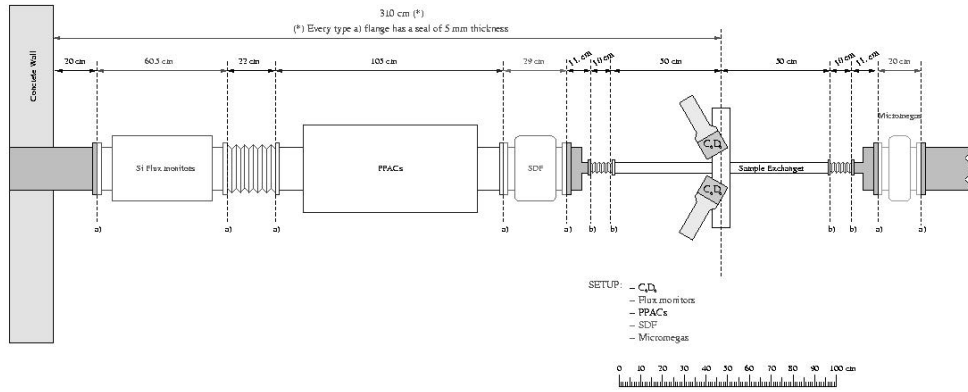


FIG. 3.13 – Configuration des détecteurs de la zone expérimentale pour la campagne de commissioning de n\_TOF en 2001. Les PPACs restent à la même place dans toutes les autres campagnes.

Nous reportons ici la description rapide des systèmes utilisés et les premiers résultats obtenus pour valider les simulations sur l'installation. Quelques uns des détecteurs décrits ici seront utilisés pendant nos mesures pour des mesures simultanées (capture, caractérisation). En particulier, quelques PPACs<sup>13</sup>, ont fait partie de cette campagne. [76].

### 3.5.1 Une brève présentation des détecteurs sur la ligne

#### • Pour mesurer des neutrons par réaction $(n, \gamma)$ : les détecteurs $\gamma$

- $\text{C}_6\text{D}_6$  Ce sont des scintillateurs liquides, benzène deutéré, couplés à des photomultiplica-

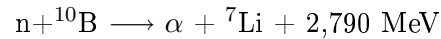
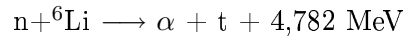
<sup>13</sup>les 5 premiers construits et testés.

teurs, qui détectent un gamma issu d'une cascade de désexcitation suivant une capture [88]. La méthode de la fonction poids, simulée puis vérifiée par calibrations est appliquée à la réponse des détecteur [89]. Ils permettent d'obtenir une caractérisation du flux et du bruit de fond  $\gamma$  de l'installation avec des cibles de référence comme l' $^{197}\text{Au}$  et le  $^{56}\text{Fe}$ .

- **BaF<sub>2</sub>** Ce sont des cristaux couplés à des photo-multiplicateurs qui permettent de mesurer l'énergie totale de la cascade de  $\gamma$  qu'ils détectent, ce qui permet de discriminer les particules issues de cascades après capture, après fission ou du bruit de fond. Testé au cours de cette période en prévision des expériences avec le Total Absorption Calorimeter (4 $\pi$ BaF2) en 2004, actuellement en cours d'analyse [90].

- **Pour détecter les neutrons par réaction sur le  $^6\text{Li}$**

Ils exploitent les réactions [91] :



- **SiLi** Quatre détecteurs silicium détectent les  $\alpha$  et tritons issu des réactions entre le faisceau de neutrons entrant et un échantillon constitué de  $^6\text{Li}$  déposé sur du mylar. Ce dispositif permet d'obtenir le flux de neutrons intégré sur toute la surface du faisceau [92].
- **Micromegas** Ce détecteur à gaz (Ar ou He mélangé à de l'isobutane) permet de localiser sur un système de bandes, le passage de particules alpha ou tritons créées par les neutrons sur une électrode recouverte de  $^6\text{Li}$ . Il a permis ainsi d'obtenir la distribution spatiale du faisceau dans l'aire expérimentale, en fonction de l'énergie [93].
- **BF<sub>3</sub>** Ce détecteur constitué de 3 cylindres remplis de BF<sub>3</sub> enrichi à 80% de  $^{10}\text{B}$ , est un compteur proportionnel détectant la dérive vers un fil central d'électrons arrachés du gaz par les alphas et les tritons. Placés dans la zone finale du faisceau au bout de la ligne d'échappement (NEL), dans le bloc de polyéthylène, il permettent de contrôler en ligne l'alignement du faisceau.

- **Pour mesurer les neutrons à partir des fissions induites**

- **La chambre d'ionisation de PTB, un détecteur de référence** Ces chambres d'ionisation<sup>14</sup> dont le principe est proche de celui des PPACs sont utilisées avec des dépôts d' $^{235}\text{U}$  et d' $^{238}\text{U}$ , cibles de référence jusqu'à 20 MeV, sur des cathodes en platine [73]. Elles ont été installées pour caractériser la distribution du flux de neutrons de l'installation et en vérifier les simulations.

---

<sup>14</sup>fournies par le PTB, Physicalisch-Technische Bundesanstalt, laboratoire de mesures de références.

- **PPAC** Les chambres à avalanches à plaques parallèles sont des détecteurs à gaz permettant la localisation et l'estimation précises de l'instant du passage de particules chargées (alphas, produits de fission). Les mesures faites à n\_TOF font l'objet de cette thèse, où détecteurs, montage et méthode d'analyse sont décrits en détails. L'utilisation de cibles de référence ( $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ ) permettent de caractériser le flux de neutrons.
- **FIC** Cette FISSION Chamber, chambre d'ionisation à l'argon et au  $\text{CF}_4$  a été installée dans le faisceau après la période de commissioning [94], cependant, dans le souci de citer les principaux détecteurs des campagnes de mesures que nous décrivons, nous la mentionnons ici.

### 3.5.2 Les résultats obtenus

Les mesures de caractérisation ont été faites en mode capture, c'est à dire, rappelons-le avec un diamètre du collimateur BSC de 1,8 cm.

#### • Relation temps-énergie : la référence gamma-flash

On observe sur tous les détecteurs, aux temps très courts, le gamma-flash, signal très intense, que l'on attribue à la détection de bouffées de particules de grande énergie accompagnant le faisceau et non déviées par l'aimant, se propageant à une vitesse voisine de la vitesse de la lumière.

$$v_{\text{gamma-flash}} \approx c \quad (3.18)$$

et pour lequel

$$t_{\text{mod}} \approx 0 \quad (3.19)$$

Responsable d'une saturation dans certains détecteurs (dans la PTB, par exemple, les données obtenues s'étalent entre 0,1 eV et seulement 1 MeV correspondant au temps de récupération après le gamma-flash), son intensité est fortement diminuée par les nouveaux blindages installés début 2002 pour diminuer le bruit de fond (voir paragraphe plus loin 3.5.3).

Nous avons signalé dans le paragraphe 3.4.1 que le temps mesuré dépend du temps de modération, puisque la référence de déclenchement est associée au faisceau de protons et non au faisceau de neutrons. Nous avons montré que la vitesse du neutron en sortie de cible, à partir de laquelle l'énergie est calculée, dépend de la longueur géométrique de vol  $L_{\text{geom}}$ , de la longueur de modération  $\lambda$  et du temps  $t_{\text{mes}}$  via :

$$v_n = \frac{L_{\text{geom}} + \lambda}{t_{\text{mes}}/PS} = \frac{L_{\text{eff}}}{t_{\text{mes}}/PS} \quad (3.20)$$

La valeur de  $t_{mes/PS}$  étant définie à une constante de normalisation prêt dépendant notamment des longueurs de câbles.

ainsi, on a :

$$t_{reel}(gamma - flash) = \frac{L_{eff}}{c} = \frac{L_{geom} + \lambda}{c} \quad (3.21)$$

Ainsi, il est possible de s'affranchir de toute référence extérieure, en utilisant le signal de référence gamma-flash. Le temps de référence associé à ce dernier pour une distance de vol de l'ordre de 185 m est  $t_{reel}(gamma - flash) \approx 615$  ns.

La longueur  $L_{eff}$  peut être obtenue en fonction de l'énergie par simulation comme nous l'avons déjà mentionné, mais elle peut aussi être déterminée expérimentalement en utilisant l'énergie connue de résonances de référence [83].

#### • Flux en fonction de l'énergie

Nous reportons ici la figure des flux mesurés lors du commissioning par les différents détecteurs présents [76, 95]. Tous les résultats expérimentaux sont cohérents entre eux.

Le comportement isoléthargique entre 1 eV et 10 keV est tout à fait bien reproduit. Les absorptions prévues dans l'oxygène (500 keV et 1 MeV) de l'eau et dans l'aluminium (30 keV, 100 keV et 200 keV) de la fenêtre de sortie de cible sont observables. A partir de 1 MeV où l'effet des collimateurs est négligeable, l'accord entre les données expérimentales de flux et les simulations sont bonnes. Avant, 20% d'écart sont observés. Le résultat obtenu par la méthode de double activation à l'énergie de 4,9 eV se situe entre les données obtenues pour l' $^{235}\text{U}$  (bruit de fond non considéré) et par simulation [96].

Nous verrons dans la suite que, grâce aux cibles de référence, le flux pourra être mesuré lors des différentes campagnes par les détecteurs de capture ou de fission (en plus du moniteur SiLi), et nous verrons notamment le flux mesuré par les PPACs en mode fission et par les  $\text{C}_6\text{D}_6$  en mode capture.

#### • Profil faisceau : distribution spatiale du flux en fonction de l'énergie

Jusqu'à 100 MeV, le profil du faisceau en mode capture a pu être obtenu grâce au détecteur micromégas, en salle expérimentale, par des mesures dans 3 directions différentes, afin de réaliser une approximation analytique de la forme du faisceau. Selon l'intervalle considéré entre 1 eV et 30 MeV, la largeur à mi-hauteur des projections horizontales et verticales du faisceau diminue à mesure que l'énergie des neutrons augmente. Une approximation analytique du profil du faisceau en mode capture a donc pu être obtenue [97, 93].

### • Fonction de résolution

Les résonances obtenues par mesure de capture avec les  $C_6D_6$  ont été ajustées avec le code SAMMY [98], en vue de vérifier la forme de la fonction de résolution obtenue par simulation [99].

### 3.5.3 Bruit de fond amélioré

Suite aux expériences de caractérisation du faisceau et de tests des détecteurs, un bruit de fond gamma 50 fois plus important que celui attendu a été mesuré. Le niveau de bruit de fond inattendu a été décelé avec les  $C_6D_6$  grâce au taux de comptage sur l'isotope de référence  $^{197}\text{Au}$ . Un aveuglement des détecteurs gamma suite au gamma flash trop intense, pendant près de 100  $\mu\text{s}$  limitant l'énergie accessible à quelques keV. De plus, sur la droite du faisceau dans l'aire expérimentale, le bruit de fond s'est révélé plus important.

Les conséquences sur les mesures de capture étant importantes, la nature du bruit de fond a été étudiée plus précisément par simulations : (reportées dans le rapport d'étape : [87] chapitre 4 puis [100]). Une caractéristique attendue est que 50% des protons ne sont pas arrêtés dans le plomb, ils sortent de la cible, sont extérieurs au faisceau de neutrons, mais viennent interagir sur les éléments du tunnel, constituant une source secondaire de neutrons, photons et particules chargées. La composante du bruit de fond qui n'avait pas été envisagée est celle dont l'origine est attribuée aux muons de plus d'1 GeV. En guise d'explication de l'asymétrie, un blindage globalement plus faible sur l'ensemble du parcours a en effet été mis en évidence par simulations.

Après les études de simulations couplées à une nouvelle campagne de mesure de bruit de fond (Septembre-Octobre 2001), l'installation des blindages correspondants a eu lieu, de nouvelles mesures ont été effectuées, le tout est relaté dans le rapport [101]. Finalement une diminution d'un facteur 30 du bruit de fond gamma grâce à de nouveaux blindages (3 m de fer) et une meilleure uniformité du bruit de fond a pu être obtenue.

L'amplitude du signal associé au gamma-flash est réduit d'un facteur 70 entre les toutes premières mesures et celles dans les conditions améliorées.

## 3.6 Conclusion : n\_TOF, une nouvelle source de neutrons très performante

### 3.6.1 Comparaisons avec les autres sources de neutrons

Trois installations parmi celles que nous avons citées dans le paragraphe 3.1.1 ont été comparées à n\_TOF sur des critères retenus pour des expériences de mesure de taux de réactions induites par neutrons sur de très petites cibles radioactives ou stables, terrain d'étude en astro-

physique. Le résultat de cette étude est décrit dans la référence [58], où sont ainsi confrontées ORELA, MLNSC, n\_TOF (avant sa caractérisation) et la future SNS.

Quelques estimations issues de différentes descriptions (pour les flux de [58] pour ORELA et LANSCE, de [102] pour GELINA, et les résolutions de ORELA sont issues de [103] et de LANSCE de [104]) sont reportés dans le tableau 3.2. Les valeurs où le flux intervient sont calculées entre 1 keV et 300 keV.

	ORELA	GELINA	LANSCE	n_TOF
$\Delta t(\text{ns})$	8	1.6	125	7
T	1.9 ms	1.25 ms	50 ms	14.4 s
L(m)	40	30	20	185
Domaine d'énergie	1 eV - 3 MeV	1 eV - 3 MeV	1 eV - 3 MeV	1 eV - 1 GeV
$\Phi(\text{n/cm}^2/\text{s})$ flux moyen	$2.0 \cdot 10^4$	$1.7 \cdot 10^4$	$4.6 \cdot 10^6$	$0.65 \cdot 10^4$
$L^2\Phi(\text{n/s})$	$3.2 \cdot 10^{11}$	$1.5 \cdot 10^{11}$	$1.8 \cdot 10^{13}$	$2.2 \cdot 10^{12}$
$\Phi T/\tau_n(\text{n.cm}^2/\text{s})$	$4.2 \cdot 10^5$	$3.1 \cdot 10^5$	$5 \cdot 10^9$	$2 \cdot 10^8$
$L^3\Phi T/\tau_n(\text{n.m/s})$	$2.7 \cdot 10^{14}$	$8.3 \cdot 10^{13}$	$3.9 \cdot 10^{17}$	$1.2 \cdot 10^{19}$
$\frac{\Delta E}{E}(1\text{keV})$	$1 \cdot 10^{-3}$	$1.6 \cdot 10^{-3}$	0.005	$0.46 \cdot 10^{-3}$
$\frac{\Delta E}{E}(100\text{keV})$	$2.7 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-3}$	0.05	$1.7 \cdot 10^{-3}$

TAB. 3.2 – Tableau de comparaisons de différents paramètres des principales sources de neutrons. Les flux sont considérés entre 1 et 300 keV [91].  $\tau_n$  représente le temps de déversement des neutrons.

Dans une optique un peu plus générale, les auteurs de [82] se concentrent sur le flux de neutrons et la résolution, et s'attachent à comparer, via la notion de brillance, l'installation n\_TOF avec celle de GELINA. En définissant une figure de mérite faisant intervenir ces grandeurs, ils proposent une évaluation plus fiable des 2 sources, tenant compte de l'extension en temps exceptionnelle jusqu'à 20 GeV de la source n\_TOF.

Il est important de remarquer que sur n\_TOF, jusqu'à quelques keV (pour la base de vol de 30 m de GELINA), la résolution est meilleure qu'à GELINA, en revanche, au delà, la résolution de GELINA devient meilleure.

D'autre part, si le flux moyen dans les deux installations est à peu près identique, le cycle utile de n\_TOF, représenté par  $\Phi T/\tau_n$  dans le tableau 3.2, est lui bien meilleur que celui de Geel où le taux de répétition est bien plus élevé, et donc le flux instantané moins important. C'est pourquoi n\_TOF est particulièrement bien adapté pour s'affranchir du bruit de fond induit par des cibles radioactives.



### 3.6.2 Conclusion : performances adaptées aux mesures de section efficaces de fission

La source de neutrons n\_TOF dont nous venons de décrire les spécificités et les performances innovantes, est tout à fait adaptée aux mesures de fission sur les noyaux cités plus haut, dans le contexte décrit dans le premier chapitre. Parmi les sources possible, elle est particulièrement performante notamment pour des mesures sur les actinides très radioactifs, en raison de son cycle utile. Résumons les principaux atouts de ce faisceau.

- 11 ordres de grandeurs en énergie (magnitude)
- source intense de neutrons
- bonne résolution liée à la largeur du faisceau 7 ns, et à la longueur de vol 200 m
- source pulsée
- cycle utile faible pour une intensité moyenne donnée

On peut donc exploiter des neutrons d'énergies variant sur une large gamme pour induire des fissions dont on veut mesurer la section efficace sur des noyaux particuliers

## Chapitre 4

# Dispositif de mesure pour la fission : description des détecteurs et cibles

### 4.1 Méthode de mesure

#### 4.1.1 Taux de détection de la particule signant la réaction - efficacité

Les particules produites lors d'une réaction en sont la signature, on choisit un type de particule, dont on regarde la "fréquence" d'apparition, ou taux d'émission.

Ce qu'on détecte réellement est le nombre de particules issues de l'élément  $dS(x,y)$ , par unité de temps qui traversent une partie de détecteur délimitant un angle solide  $d\Omega$  autour de la direction  $\theta$ .

Le système de détection est caractérisé par son *efficacité* dont on pondère la valeur réelle du taux d'émission de particules. Le détecteur (géométrie, matériaux) et la manière dont il est utilisé (positions par rapport à la cible, électronique associée, seuils d'acquisition) vont conditionner l'efficacité totale du système, rapport du nombre d'événements enregistrés sur le nombre d'événements émis. Parmi toutes les particules émises par l'élément de surface cible, une fraction seulement arrive dans le détecteur (angle solide, absorptions éventuelles) et parmi celles qui arrivent au détecteur, toutes ne sont pas enregistrées. Nous reviendrons sur l'efficacité de notre système de détection lors de l'analyse des données.

En notant l'efficacité  $\varepsilon$  dépendant des variables  $\theta$  et  $E$ , on écrit la relation entre taux de particules émises dans la direction  $\theta$  détectées et taux de réactions dans l'élément  $dS$  repéré en  $(x,y)$  sur la cible :

$$\frac{dN_{det.}(x, y, \theta, E)}{dS dt dE d\Omega} = \frac{dN_{réac.}(x, y, \theta, E)}{dS dt dE d\Omega} \times \varepsilon(\theta, E)$$

### 4.1.2 La signature d'une fission

Nous avons vu dans le chapitre 2 que lors du processus de fission deux noyaux résultent de la scission du noyau excité. Emportant à eux deux environ 160 MeV, leur distribution en masse s'étale entre  $A = 60$  et  $A = 160$ , et leur numéro atomique entre  $Z = 30$  et  $Z = 60$ . La distribution en masse des fragments dépend de l'énergie du neutron incident, le rapport des énergies emportées varie comme l'inverse du rapport des masses. Ce rapport peut être centré sur 1, dans le cas de la fission symétrique, favorisée à grande énergie, mais si la fission est asymétrique, les 2 PF peuvent avoir des masses très différentes. Emis simultanément, et, en première approximation<sup>1</sup>, à 180° l'un de l'autre, les produits de fission sont donc la signature du phénomène de fission. Mais la détection d'un noyau émis par la cible ne signifie pas obligatoirement qu'il y a eu fission dans la cible.

Une question se pose alors : comment déterminer de manière univoque la réaction de fission ? Une particule serait le résultat d'un autre processus (résidu de spallation, multifragmentation...) si elle est isolée en temps. La détection en *coïncidence* de 2 noyaux signe donc la réaction de fission de manière univoque. Cependant, nous verrons, en affinant l'analyse, qu'il peut y avoir dans certains cas des coïncidences fortuites dans une proportion que nous évaluerons en fonction de la cible considérée. Le principe de mesure s'appuie donc sur la détection en coïncidence des produits de fission de part et d'autre de la cible, dont ils sont supposés sortir à 180° l'un de l'autre, à partir d'un noyau localisé sur la cible, avec un angle  $\theta$  par rapport à la direction du faisceau.

Notons en outre que si l'on détecte tous les produits de fission issus d'une cible étendue, nous aurons 1 paire de PF en coïncidence pour 1 réaction.

### 4.1.3 Relation section efficace absolue, flux incident et taux de réactions

Le taux de réaction ayant lieu dans la surface  $dS$  et donnant lieu à l'émission d'un PF dans l'angle  $\theta$  est proportionnel :

- à la densité locale de noyaux cibles  $\frac{dN_{(cib.)}}{dS}(x, y)$
- au flux instantané de projectiles incidents  $\frac{dN_{(proj.)}}{dEdSdt}(E, x, y)$ .

et le coefficient de proportionnalité est la section efficace de fission  $\sigma_{fiss.}(E)$

$$\frac{dN_{réac.}(x, y, E)}{dSdt dE d\Omega} = \frac{dN_{(cib.)}}{dS}(x, y) \times \sigma_{fiss.}(E) \times \frac{dN_{(proj.)}}{dEdSdt}(E, x, y) \quad (4.1)$$

En considérant le flux incident par paquet de protons incident, noté  $\Phi(E, x, y)$ , on peut écrire la valeur de la section efficace de fission absolue pour une cible, dont l'expression générale en

---

<sup>1</sup>pour des énergies pas trop hautes.

fonction du taux de détection des PF dans tout le détecteur est :

$$\sigma_{fiss.}(E) = \int_{Scible} \frac{(\frac{dN_{det.}(x,y,E)}{dSdE})}{\rho_s(x,y) \times \Phi(E,x,y) \times \varepsilon(E)} dS(x,y) \quad (4.2)$$

En supposant la densité  $\rho_s(x,y)$  de noyaux uniforme dans cette cible, et le flux incident  $\Phi(E)$  également indépendant de x et y, on a :

$$N_{réac.}(E) = N_{cib.} \times \sigma_{fiss.}(E) \times \Phi(E) \quad (4.3)$$

et

$$\sigma_{fiss.}(E) = \frac{N_{det.}(E)}{N_{cib.} \times \Phi(E) \times \varepsilon(E)} \quad (4.4)$$

où  $N_{det.}(E)$  est le nombre de produits de fission induits par un neutron d'énergie E, et détectés auprès de la cible dont  $N_{cib.}$  est le nombre total de noyaux.

Et le flux est déterminé de manière extérieure aux mesures (simulation, autre mesure), ou bien sur le même dispositif à partir d'une cible de référence.

#### 4.1.4 Principes des mesures

##### • Mesures relatives

Si l'on effectue des mesures simultanément sur une cible dont la section efficace est bien connue, on peut l'utiliser comme référence, et obtenir des résultats relatifs à cette référence, le rapport des taux de réaction détecté entre 2 cibles notées 1 et 2, s'écrira :

$$\frac{N_{det.1}(x,y,E)}{N_{det.2}(x,y,E)} = \frac{N_{cib.1}(x,y) \times \sigma_1(E) \times \Phi_1(E,x,y) \times \varepsilon_1(E)}{N_{cib.2}(x,y) \times \sigma_2(E) \times \Phi_2(E,x,y) \times \varepsilon_2(E)} \quad (4.5)$$

Si les cibles sont soumises au même flux incident, on a alors pour le rapport des sections efficaces :

$$\frac{\sigma_1(E)}{\sigma_2(E)} = \frac{N_{det.1}(x,y,E)}{N_{det.2}(x,y,E)} \times \frac{N_{cib.2}(x,y)}{N_{cib.1}(x,y)} \times \frac{\varepsilon_2(E)}{\varepsilon_1(E)} \quad (4.6)$$

##### • Energie des neutrons

Pour obtenir un spectre de la section efficace de fission en fonction de l'énergie des neutrons qui les induisent, nous devons accorder une attention particulière à la mesure de l'énergie des neutrons. L'énergie des neutrons est mesurée sur n\_TOF par la méthode du temps de vol, comme nous l'avons décrit dans le paragraphe 3.4.1 du chapitre 3. Nous avons vu qu'elle s'étend sur une large gamme, des énergies thermiques à 20 GeV. Connaissant l'instant de départ des neutrons

(associé à l'instant de l'impact des protons sur la cible de spallation) et mesurant leur instant d'arrivée, on calcule alors le temps de parcours.

La résolution en énergie sera fonction de la précision avec laquelle l'énergie des neutrons peut être déterminée, c'est à dire la précision avec laquelle leur temps d'arrivée peut être déterminé<sup>2</sup>.

On considère que les événements "émission des produits de fission" et "impact du neutron sur la cible" sont simultanés, aussi est-ce le parcours des noyaux avant leur détection qui introduit une fluctuation sur le temps de détection. En pratique, les 2 produits de fissions seront détectés à 2 instants assez proches (quelques dizaines de ns) pour considérer qu'ils ont été émis en coïncidence, compte tenu de la différence de temps de parcours maximum estimé entre ces 2 produits de fission, qui dépendra de leur masse, de l'énergie, de l'épaisseur et de la nature de la matière qu'ils doivent traverser avant d'être détectés.

L'énergie des neutrons incidents variant de manière continue, on considère le nombre de neutrons d'énergies comprise entre  $E$  et  $E+\Delta E$  incidents sur la surface considérée de la cible correspondant au nombre de neutrons dans un intervalle d'énergie  $\Delta E$ . On enregistrera alors le nombre d'événements induits par des neutrons d'énergies comprises dans un intervalle donné, dont la largeur dépendra de la résolution et de la statistique accessible.

### • Mesure du flux avec des cibles référence

Grâce aux cibles de référence dont la section efficace est bien connue ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ), on peut se livrer à une estimation du flux incident :

$$\Phi(E, x, y) = \int_{S_{cible}} \frac{\left( \frac{dN_{det.}(x, y, E)}{dS dt dE} \right)}{\rho_S(x, y) \times \sigma_{fiss.}(E) \times \varepsilon(E)} dS(x, y) \quad (4.7)$$

Ce qui se simplifie en négligeant l'inhomogénéité de la cible et du flux intercepté par la cible :

$$\Phi(E) = \frac{N_{det.}(E)}{N_{cib.} \times \sigma_{fiss.}(E) \times \varepsilon(E)} \quad (4.8)$$

Ces cibles permettent ainsi de mesurer une caractéristique essentielle de l'installation : le flux, mais aussi, dans un premier temps, de valider le système de mesure dans certains domaines. Pour les mesures, nous les utiliserons donc comme moniteur de flux.

---

<sup>2</sup>mais pas seulement, on l'a vu (cf. paragraphe 3.4.2) la largeur en temps du faisceau de protons incidents entre en compte également.

## **4.2 Choix du détecteur et des caractéristiques générales du dispositif de mesures**

A la lumière des descriptions des systèmes de mesures utilisés précédemment pour des mesures similaires, nous adaptons la conception générale de notre système au cahier des charges de nos mesures.

Nous souhaitons donc évaluer des taux de fissions induites par des neutrons dans des cibles inconnues en détectant les produits de fission sortant de ces cibles. On ne cherchera pas à les identifier en mesurant leur énergie ou leur masse. Cependant, sans faire de spectrométrie de manière précise, on veut pouvoir les différencier des fragments issues d'autres réactions. Nous souhaitons également pouvoir les localiser.

Le dépôt d'énergie de tels ions peut être exploité dans les détecteurs solides, comme les détecteurs semi-conducteurs silicium, ou plus souvent dans les gaz à haute pression comme dans les chambres à fission ou à basse pression comme dans les chambre d'ionisation, les chambres à fil (MWPC) ou les compteurs à plaques parallèles à avalanche. Parmi ces différentes possibilités, qu'allons-nous choisir, et pourquoi ? C'est l'objet des paragraphes suivants.

### **4.2.1 Cahier des charges des mesures et contraintes**

La nécessité d'un mode "fission" sur n\_TOF pour le faisceau de neutrons incidents, caractérisé par un diamètre 4 fois plus grand (soit 8 cm) que celui des expériences de capture, a été motivée par la volonté d'augmenter les taux de comptage, proportionnel au nombre d'atomes dans la cible.

Il faut que ces noyaux puissent sortir de la cible dans laquelle se situe leur noyau source. Les noyaux perdent de l'énergie au cours de la traversée de la cible ou du support sur lequel ces cibles sont en général déposées. Les épaisseurs de la cible et du support sont donc limitées par la prise en compte de cet effet. On prendra une épaisseur de cible suffisante pour présenter un maximum de matière au flux de neutrons, et pas trop grande pour permettre aux PF de sortir du matériau. Quant au support, qui doit lui aussi laisser passer les produits de fission, on utilisera une épaisseur minimale conditionnée par des considérations de solidité.

Si on veut détecter chaque PF de part et d'autre de la cible, il faut un volume actif de détection tout autour de la cible. En imaginant une cible mince de diamètre 8 cm étendue sur un support mince, on s'attend à récupérer des PF de chaque coté de cette feuille. On doit approcher au mieux détecteurs et cible, gage de grande acceptance géométrique également.

La technique de coïncidence que nous voulons utiliser pour discriminer les PF des noyaux issus des autres voies de sorties qui ont lieu en même temps que la fission nécessite alors 2

détecteurs capables de délivrer l'information temps du passage des PF qui les traversent.

Le flux intense incidents se compose de neutrons répartis sur une gamme d'énergie continue entre 0,02 eV et 20 GeV (entre un peu plus de 600 ns de temps de parcours des 200 m par le neutron et près de 100 ms). L'instant d'impact d'un neutron est assimilé à l'instant de détection d'un PF. Une grande précision en temps est donc requise, car on doit pouvoir distinguer des événements séparés de quelques dizaines de nanosecondes. La résolution en énergie requise du système de détection dépend en partie de la largeur des résonances que l'on souhaite mettre en évidence sur les spectres des différentes cibles. Le système de détection doit être capable de séparer 2 temps correspondant à 2 événements issus de 2 neutrons d'énergies proches. Il doit donc être rapide et supporter un grand taux de comptage d'événements, on pense en effet aux mesures sur des cibles présentant une radioactivité alpha importante. Un détecteur dont le temps mort est faible est donc souhaitable.

Nous devons perturber le moins possible le faisceau incident, pour pouvoir faire des mesures en simultané sur la même ligne en aval de notre montage, aussi des détecteurs les plus minces possibles sont-ils essentiels.

Une bonne efficacité de détection (proche de 1) est requise, motivant un maximum de surface utile. Puisqu'il va couvrir une grande surface, le détecteur que nous choisissons doit donc être transparent aux neutrons incidents, répartis sur une grande surface.

On doit pouvoir localiser les produits de fission sur les détecteurs, en connaître l'angle d'émission et ainsi localiser sur la cible le noyau source de la fission. Ceci permet d'être capable de prendre en compte les inhomogénéités de la surface de cible ou du profil du faisceau. Pour cela nous choisissons un détecteur capable de localiser les particules détectées.

### • Cibles et support

L'épaisseur des cibles doit être optimisée pour que des noyaux d'énergies entre 30 et 110 MeV, de masses atomiques  $A$  comprises entre 70 et 170 u, puissent en sortir. Dans cette limite, les cibles doivent avoir un nombre de noyaux maximal pour assurer un taux de comptage conséquent. Le diamètre minimum des cibles doit correspondre aux 8 cm de diamètre du faisceau.

Les supports des cibles doivent allier solidité - tant à la fabrication qu'à l'usage - et non seulement, comme les cibles elles-mêmes, transparence aux PF.

### • Choix d'un détecteur à gaz

Nous excluons les détecteurs solides, qui présenteraient trop de matière au faisceau de neutrons. Les détecteurs à gaz, eux, permettent de pallier à cet inconvénient et présentent un rapport surface/coût acceptable.

Parmi les détecteurs à gaz, peuvent être utilisées les chambres d'ionisation ou chambre à fission, sous haute pression ou sous basse pression, des chambres comme celle mentionnée dans le paragraphe 3.5.1 ou les compteurs proportionnels. Les détecteurs à gaz détectent individuellement les ions tout en offrant la possibilité de travailler à haut taux de comptage. En mesurant temps, énergie et éventuellement position, ils permettent de détecter le passage de particules de  $Z$  très différents.

Et même si le remplissage avec du gaz peut entraîner des difficultés (fuites, fenêtres), leur utilisation est possible dans beaucoup de conditions expérimentales.

Parmi les compteurs proportionnels ou semi-proportionnels pouvant fonctionner à basse pression décrits dans [105], chambres à fil [106] et Chambres à Avalanches à Plaques Parallèles encore appelés CAPPAC ou PPACs<sup>3</sup> (Parallel Plate Avalanche Chamber) permettent de localiser les noyaux détectés.

Les PPACs présentent peu de matière au faisceau, et sont uniformes en épaisseur.

Ce sont des détecteurs rapides, qui offrent une bonne résolution en temps. Fiables, ils sont peu sensibles aux rayonnements gammas, et ne peuvent pas être détruits par un fort rayonnement ionisant.

Des résolutions en temps inférieures à 200 ps ont pu être obtenues [107], et une résolution en position de l'ordre de 0.5 mm (fwhm) [108], valeurs associées à des conditions particulières, illustrent cependant les performances accessibles à de tels détecteurs. Penchons-nous d'un peu plus près sur ces détecteurs.

### 4.2.2 Notre choix : les compteurs semi-proportionnels PPACs

#### • Historique

Proposés en 1949 par J.W. Keuffel [109], la géométrie à plaques parallèles à haute pression est étudiée entre autres par Pidd et Madanski dans [110]. C'est en 1952, que Christiansen développe les premiers PPACs chambre à plaques parallèles baignées dans un gaz à basse pression, exploités dans la détection de noyaux légers ou de gammas [111]. Laissés de côté au profit des détecteurs solides pour la détection des particules légères jusqu'en 1974, le regain d'intérêt pour la détection d'ions lourds a permis de tester et d'améliorer leurs performances sur diverses expériences. Ils ont depuis, été largement utilisés pour détecter aussi bien les particules légères [112] que les noyaux moyennement lourds ( $^{16}\text{O}$  par Stelzer en 76, par exemple [107]) ou relativement lourds comme les fragments de fission.

Dès les années 80, leurs propriétés ont été exploitées dans des expériences sur ions lourds pour des applications telles que la détermination de trajectoire, leur dimension ayant pu atteindre le

---

<sup>3</sup>prononcer pipac.



mètre carré [108]. Outils caractérisés par une excellente précision en temps, ils ont été parfois associés à d'autres détecteurs pour permettre des mesures complémentaires, ou bien, en tirant parti de leur grande surface et de leur faible sensibilité aux champs magnétiques, implantés sur le plan focal de spectromètres.

### • Principe

Les ions chargés interagissent avec les électrons de la matière. S'ils ont assez d'énergie, c'est à dire plus que le potentiel minimum d'ionisation des noyaux du milieu, ils peuvent arracher les électrons des atomes du gaz qu'ils rencontrent, et ce en perdant eux même de la vitesse. Ils créent ainsi sur leur passage, des paires électron - ion. C'est un des processus qui contribue à la dégradation de leur énergie au cours de la traversée des milieux : l'ionisation.

Les électrons ainsi libérés le long du parcours de l'ion dans le gaz forment une quantité de charges qui peut être collectée, ce qui fournit les informations sur le passage de l'ion. Cette collection est assurée par une différence de potentiel établie entre 2 électrodes, qui provoque le déplacement des charges opposées (ions et électrons) dans des sens opposés. Les porteurs de charges se déplacent dans l'espace entre les électrodes (distantes de quelques millimètres) sous l'effet du champ électrique uniforme et stable  $E$ , avec une certaine mobilité : les électrons migrent de l'ordre de mille fois plus vite que les ions. L'uniformité du champ est garantie par le parallélisme des électrodes.

Suivant les caractéristiques du champ électrique et du gaz, il peut y avoir multiplication des charges : des ionisations secondaires peuvent être induites par les électrons libérés par l'ion incident, et ainsi de suite, provoquant entre les électrodes un phénomène pouvant aller jusqu'à l'avalanche.

Les électrons se meuvent rapidement vers l'anode, pendant que les ions, beaucoup plus lents, y induisent une charge en se dirigeant vers la cathode. Les électrons induisent un signal très rapidement (temps de parcours de l'ordre de la ns). Quant aux ions positifs, leur temps de migration est beaucoup plus lent (de l'ordre de la  $\mu s$ ), ils induisent donc un signal plus tardivement.

Dans les compteurs proportionnels, la charge collectée est proportionnelle à l'énergie déposée par le noyau ionisant dans le milieu. Les compteurs semi - proportionnels (figure 4.1), comme les PPACs, sont caractérisés par une multiplication de charges croissant exponentiellement avec le champ appliqué, des gains supérieurs à  $10^5$  sont observés.

Le champ électrique réduit permet de prendre en compte pour un gaz donné, sa pression et la distance entre les électrodes. Pour des valeurs de ce champ réduit comprises entre 250 et 350  $V.m^{-1}.hPa^{-1}$  [114], les charges collectées deviennent indépendantes de la perte d'énergie du projectile, le régime semi-proportionnel est atteint.

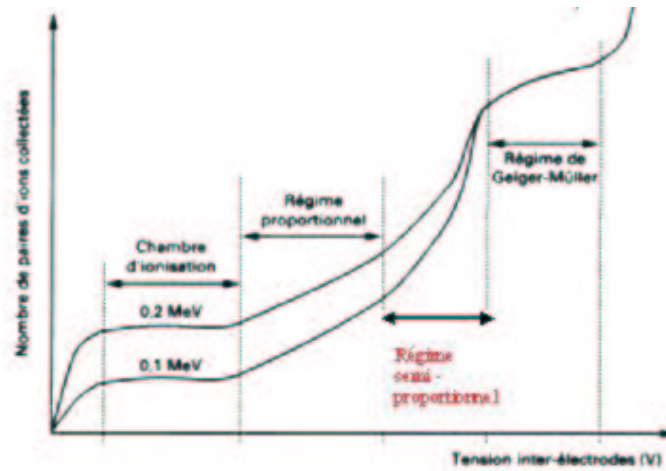


FIG. 4.1 – Zones de fonctionnement d'un détecteur à gaz. Charge collectée en fonction du potentiel entre les électrodes [113].

Les hydrocarbures comme l'isobutane ont donné de bons résultats à basse pression [115], ainsi que les gaz nobles ou des associations judicieuses de différents gaz [105].

Le gain est déterminé par les coefficients de Townsend [114].

- Il peut être affecté dans le sens d'un affaiblissement par l'auto influence des charges sur le champ, la recombinaison, le taux de comptage trop élevé (associé au temps de collection), l'attachement par l'eau ou l'oxygène.
- Il peut être affecté dans le sens d'un renforcement - pouvant amorcer le phénomène de décharge - par photo-ionisation (gaz composés), l'ionisation par les ions positifs, l'émission secondaire cathodique. Un gaz ne contenant ni eau, ni oxygène, dont la densité moléculaire est stable entre les électrodes limitera ces phénomènes, tout comme le choix de l'aluminium pour la composition des électrodes.

### • Description

Un PPAC comporte ainsi 2 électrodes constituées de deux fines feuilles conductrices parallèles et bien tendues sur un cadre (pour une surface lisse sans singularité, sans déformation) dans du gaz à basse pression (entre 1 et 20 mbar). Les particules à détecter traversent les feuilles. Ces feuilles sont espacées de quelques millimètres de manière à maintenir un champ électrique entre elles assez fort pour assurer le régime semi-proportionnel.

Une des électrodes peut ainsi fournir une information précise en temps. Et en formant un réseau de bandes conductrices sur l'électrode associée, on pourra reconstruire le centre de gravité

des charges induites et donner une information sur la position de la particule traversante, selon une direction. Mieux : en plaçant un réseau de bandes perpendiculaires similaire sur une troisième électrode regardant l'anode sur la face opposée, on peut reconstruire dans le plan les coordonnées d'impact du noyau sur le détecteur [116].

Pour assurer la stabilité de la pression du gaz, l'ensemble est placé dans une enceinte hermétique dans laquelle une circulation assure le renouvellement indispensable du gaz, qui permet l'évacuation des charges et limite l'influence du dégazage des électrodes.

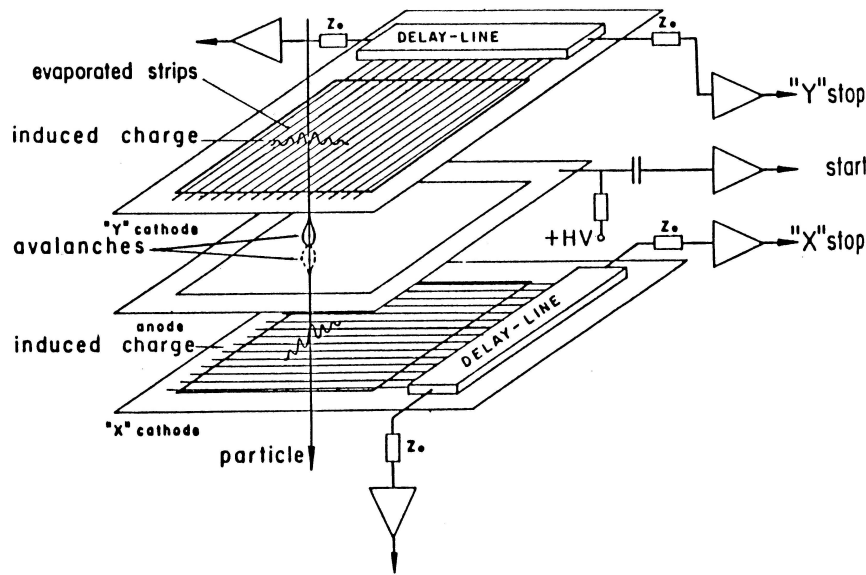


FIG. 4.2 – Schéma de principe de la détection d'une particule par un PPAC avec localisation : avalanche, charge induite sur les électrodes. La double anode centrale uniforme et les cathodes avec bandes de localisation formant un réseau perpendiculaire, ainsi que les lignes à retard sont représentées [116].

#### • Collection des charges et signaux

Le signal, produit par la charge totale créée dans le milieu par le passage du FF, est amplifié et mis en forme dans des pré-amplificateurs de tension auxquels les électrodes sont connectées. Les temps de montée des signaux sont de l'ordre de 5 ns, temps de collection des électrons.

Deux méthodes peuvent être envisagées pour les signaux de localisation des cathodes. La première consiste à placer une électronique pour chaque bande. La deuxième, méthode de la Ligne à Retard (Delay Line readout), consiste à placer un pré-amplificateur de charge à chaque extrémité du plan de localisation, avec une cellule de ligne à retard entre chaque bande [108], [116].

La deuxième méthode présente l'avantage d'éviter un nombre de préamplificateurs et de canaux d'acquisition égal au nombre de bandes. Ceci entraîne une simplification de la chaîne d'analyse et un moindre volume de données actives. Le schéma représenté sur la figure 4.2 résume les caractéristiques de fonctionnement que nous venons de décrire.

#### • Résumé des avantages des PPACs

- Diversité des projectiles détectables.
- Précision des mesures de temps : les PPACs sont rapides, le temps de collection des charges peut être très court. La mesure de temps est donc précise. Ainsi une bonne résolution en temps peut être obtenue : deux ions arrivant à deux instants très proches peuvent être détectés. La largeur du signal induit conditionne cette résolution.
- Faible temps mort à haut taux de comptage : la rapidité de collection permet de détecter 2 ions qui sont séparés d'une dizaine de ns.
- Mesures de positions possibles : la possibilité de placer deux réseaux de bandes conductrice permet une localisation dans le plan du détecteur.
- Bonne résolution en localisation : les meilleures résolutions sont de l'ordre d'un demi pas de bande.
- Transparence aux neutrons : un détecteur peut être placé sur le chemin du faisceau. L'influence des électrodes préparées avec des feuilles fines de matériaux comme le mylar est minimisée.
- Bonne efficacité de détection : les PPACs que l'on peut construire avec une grande surface utile ont une efficacité de détection approchant les 100% pour les particules lourdes.
- Longévité : leur durée de vie n'est pas limitée par les rayonnements ionisants. Ils ne sont pas détériorés par de forts courants de particules.

#### • Précautions et contraintes

- Fragiles à la manipulation
- Opérations sur gaz nécessitant des précautions lors des remplissages et vidages

### 4.3 Description détaillée des PPACs de l'IPNO

La conception des compteurs à plaques parallèles s'est appuyée sur les spécifications issues d'expériences précédentes et les contraintes spécifiques inhérentes à nos mesures. La conception des plans mécaniques a été faite avec le groupe Détecteurs de l'IPN.

### 4.3.1 Fabrication d'un PPAC

Un détecteur est constitué de 4 électrodes. Chaque électrode est formée d'une couche conductrice d'aluminium recouvrant une feuille de mylar. On obtient 2 électrodes pour l'information temps et 2 électrodes pour l'information position. Les feuilles de mylar font  $1.5\ \mu\text{m}$  d'épaisseur. L'aluminium est évaporé en laboratoire de cibles sur une surface dépassant la surface utile de  $20\ \text{cm} \times 20\ \text{cm}$  avec une épaisseur de  $0.2\ \mu\text{m}$  soit  $38\ \mu\text{g.cm}^{-2}$ .

L'anode est double, c'est à dire que l'aluminium est évaporé des deux cotés de la feuilles, uniformément. L'aluminium sur chaque cathode est évaporé en utilisant un masque de fils (diamètre  $100\ \mu\text{m}$ ) espacés de 2 mm, placé entre la feuille de mylar et le creuset d'évaporation.

Les feuilles sont tendues sur un support d'époxy recouvert de cuivre. L'épaisseur de ces plaques est de 3,2 mm et détermine ainsi l'espace entre les électrodes minces. Le blindage électromagnétique, sur les pré-amplificateurs et entre détecteurs, est amélioré par l'ajout d'une mince couche d'or recouvrant les supports cuivrés. Celle-ci présente l'avantage d'éviter une oxydation du cadre, tout en gardant des propriétés de conduction correcte. Dans ces supports de  $30,5\text{cm} \times 30,5\text{cm}$ , un carré délimitant la surface utile est creusé, les emplacements des pré-amplificateurs, des lignes à retard, des vis de serrage de l'ensemble sont prévus lors de l'usinage des cadres (voir figure 4.5). De plus, dans le circuit imprimé sont prévus des contacts, qui assureront la connexion entre chaque bande et la cellule de ligne à retard associée, ainsi que pour les pré-amplificateurs.

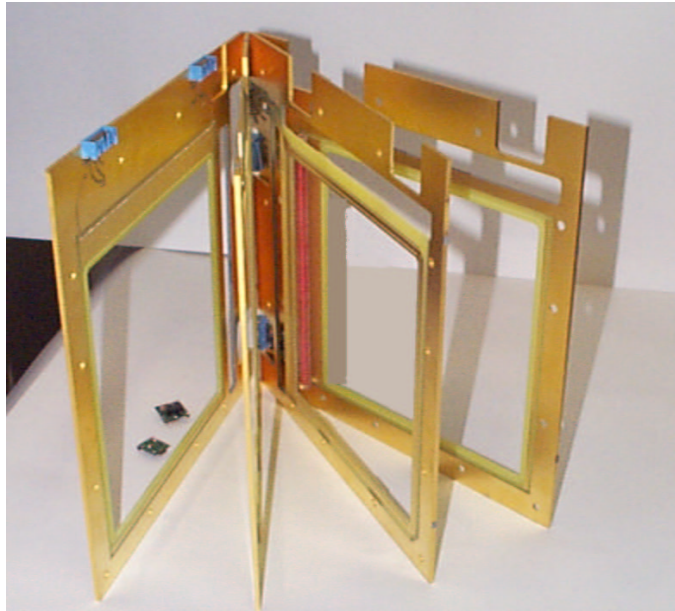


FIG. 4.3 – Vue éclatée des cadres des électrodes d'un détecteur.

La suite des opérations s'effectue en salle propre. Les feuilles sont transférées de leur plaque d'évaporation sur un cadre permettant l'application d'une tension mécanique dans le sens de bandes. Les feuilles tendues sont collées sur les cadres supports d'électrodes. Pour les cathodes, on veille à faire coïncider les barrettes de cuivre du cadre avec chaque bande.

La conduction entre bande et pavés est assurée par l'application de pâte à l'argent au pinceau fin, sur les 106 bandes de chaque cathode comme l'illustre la figure 4.4.



FIG. 4.4 – Photo d'un détail de ligne à retard avec les connexions cuivrées de chaque cellule, et la connection à la pâte à l'argent avec les bandes de la feuille de cathode.

Les cadres sont plaqués l'un sur l'autre, vissés, comme représenté à gauche sur la figure 4.5. L'anode est insérée entre les deux cathodes placées de telle façon que les deux jeux de bandes soient perpendiculaires, et forment un repère de localisation à 2 dimensions.

L'épaisseur d'un détecteur est de  $3,2 \text{ mm} \times 4 = 12,8 \text{ mm}$ . A chaque coin, sont soudés des petits ressorts permettant une tenue parfaite dans le support.

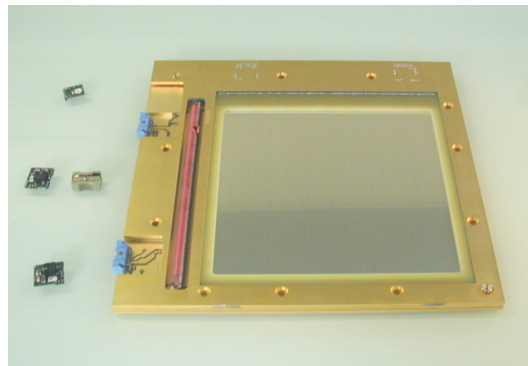
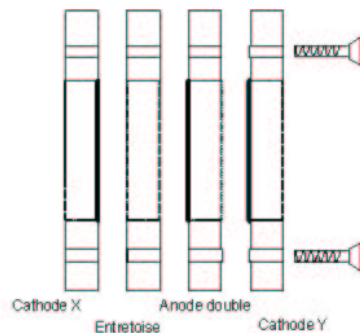


FIG. 4.5 – Schéma d'un détecteur en vue éclatée à gauche, et photo d'un détecteur monté.

Pour fonctionner, le détecteur est placé dans une enceinte hermétique, capable d'assurer un bon vide, puis d'y maintenir une circulation de gaz à basse pression ( $P = 7 \text{ mbar}$ ). Au cours des expériences, 2 types de gaz ont été utilisés, l'isobutane, inflammable et explosif dans certaines conditions, puis le C3F8, non explosif et offrant des conditions de mesures plus stables.

Le signal rapide collecté sur l'anode donne l'information temporelle, ceux des cathodes, l'information spatiale. Le temps maximum de dérive des électrons correspond à la traversée de l'espace entre les plans d'anode et de cathode, une distance de 3,2 mm, parcourue en moins d'une nanoseconde. La couche d'aluminium assure le transport des charges vers le système électronique. La couche d'aluminium a une résistance de quelques ohms, le temps de propagation du signal vers l'électronique est de l'ordre de 5 ns/m ce qui limite l'étalement du signal.

L'influence a lieu simultanément sur les cathodes et les anodes, dès que les électrons et les ions se déplacent. Les signaux sont identiques et de signe contraire. Un signal se composera de 2 parties : une partie rapide, piquée, due au déplacement des électrons et une traînée due au déplacement des ions.

#### 4.3.2 Electronique associée

L'électronique montée sur les détecteurs a été conçue par le Service Electronique Physique de l'IPNO, toute la fabrication a été mise en oeuvre par ce service.

##### • Pré-amplificateurs d'anodes

Un pré-amplificateur de courant est connecté à l'anode, qui doit fournir l'information temps.

##### • Ligne à retard

Les bandes touchées par le passage du produit de fission sur la cathode, sont déterminées en comparant les temps d'arrivée des signaux à chaque extrémité de la ligne à retard.

Une ligne à retard de bonne qualité permet de minimiser la dispersion du signal qui va alors présenter un temps de montée court, et le long de la ligne, l'atténuation en amplitude du signal doit également être minimisée, c'est pourquoi ces lignes ont été fabriquées manuellement pour satisfaire au mieux ces critères.

La ligne à retard est constituée de cellules individuelles (LC), auxquelles sont connectées les bandes, selon le schéma représenté sur la figure 4.6. La ligne a une forme cylindrique, de la longueur celle de la zone active du détecteur (21 cm, dans notre cas soit 106 cellules pour 106 bandes, avec 3 bandes inutilisées de chaque côté).

Le retard introduit dépend du choix des valeurs relatives de  $C_p$  et de  $L$ , notations de la figure 4.6. Le temps total de propagation d'un signal tout le long de la ligne à retard est d'environ

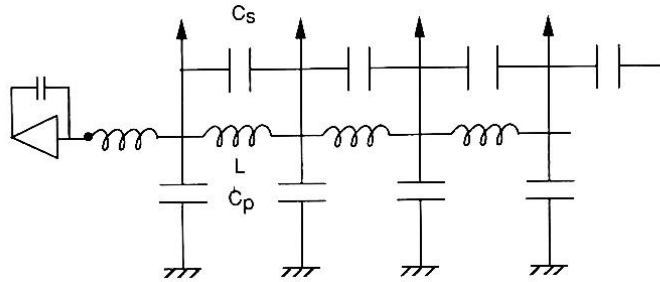


FIG. 4.6 – Schéma d'une ligne à retard. La capacité  $C_s$  prend en compte la capacité entre deux bandes consécutives [105].

330 ns. Cette ligne est fabriquée manuellement par enroulage continu d'un fil de cuivre sur une tige de plastique, taraudée régulièrement de manière à présenter des petites cavités individuelles. Elle présente la particularité d'avoir une inductance mutuelle entre cellules adjacentes. Cette inductance, favorisée par l'absence de ferrite placée en général dans les bobines industrielles, induit de petits rebonds dans les signaux, d'autant plus grands qu'ils traversent un nombre élevé de cellules. L'importance de ce rebond est limité par la capacité associée aux bandes notée  $C_s$  sur le schéma.

La terminaison des lignes à retard est une question importante si l'on souhaite éviter les réflexions des signaux dans la ligne et obtenir des signaux présentant un bon rapport de pente par rapport au bruit [117].

Dans les conditions optimales, à chaque extrémité des lignes à retard sont placés des modules, qui permettent d'amplifier la charge collectée et de la mettre en forme. Le module électronique de fin de ligne est constitué d'un étage intégrateur pré-amplificateurs de charge, adaptés à l'impédance de la ligne à retard, et d'un étage différentiateur pour la mise en forme.

Si les conditions expérimentales l'exigent (manque de voies d'acquisition), on peut remplacer un des pré-amplificateurs par un module de fin de ligne, qui réfléchit le signal vers le premier module. Cette méthode est économique, puisqu'il suffit d'une seule voie pour coder les informations obtenues des 2 cotés de la ligne, mais présente des inconvénients d'identification de signal à l'analyse.

#### • Haute tension

Nous avons vu que le passage d'un noyau chargé dans le gaz arrache les électrons des noyaux qui le constituent. Ils sont alors accélérés par un champ électrique. Le régime semi proportionnel



pour une pression de 7 mBar et un espacement de 3,2 mm entre électrodes est atteint pour des valeurs de potentiels de l'ordre de 600 V. Cette différence de potentiel est également de l'ordre de 600 V pour une pression de  $C_3F_8$  de 3 mBar.

Gaz	Pression (mbar)	Débit (l.h <sup>-1</sup> )	Tension (V)
Isobutane	7	30 - 100	$\approx 550$ V
$C_3F_8$	3	50 ( +/- 1%)	$\approx 550$ V

TAB. 4.1 – Pour les différents gaz, pression et potentiels correspondants utilisés pour les PPACs.

Une haute tension positive est appliquée à l'anode et les cathodes sont à la masse.

### 4.3.3 Tests en laboratoire hors faisceau

#### • Tests de qualité

Les premiers tests à effectuer sur un détecteur sont des mesures permettant de s'assurer de la continuité électrique entre les modules de ligne à retard et les bandes des électrodes, dont les contacts sont assurés par la pâte à l'argent, et de l'absence de contacts entre bandes sur les cathodes. Cela se fait respectivement avec un ohm-mètre qui doit mesurer une résistance infinie entre bande, et une résistance de l'ordre de quelques  $\Omega$  aux bornes d'une bande. Chaque bande est testée sur chaque cathode avant assemblage.

#### • Tests en laboratoire avec une source

Chaque détecteur a été testé dans les conditions d'expérience, c'est à dire dans l'enceinte remplie de gaz, connecté en sortie de pré-amplificateur à une chaîne d'acquisition. On utilise pour cela une source radioactive de  $^{252}\text{Cf}$ , qui se désintègre par fissions spontanées ou par émission de particules  $\alpha$ .

La largeur à mi hauteur du signal rapide de l'anode est inférieure à 10 ns, la traînée due à l'influence des ions positifs s'étale sur moins de 2  $\mu\text{s}$ . Lors de la détection d'un produit de fission, l'amplitude du signal est de plusieurs centaine de mV, tandis que la détection d'un  $\alpha$  donne un signal de quelques mV. Pour les cathodes, la largeur de la composante rapide est un peu plus grande (de l'ordre de 40 ns). La figure 4.7 représente la partie rapide d'un signal d'anode enregistré lors des tests d'un détecteur. Nous verrons des représentations des signaux associés à chaque électrode dans la partie 5.3.1 de l'analyse.

Des rebonds bipolaires en bout de ligne peuvent être observés. Les détecteurs sont testés à différentes distances de la source, et séparés d'elle par un ou plusieurs autres détecteurs. Produits

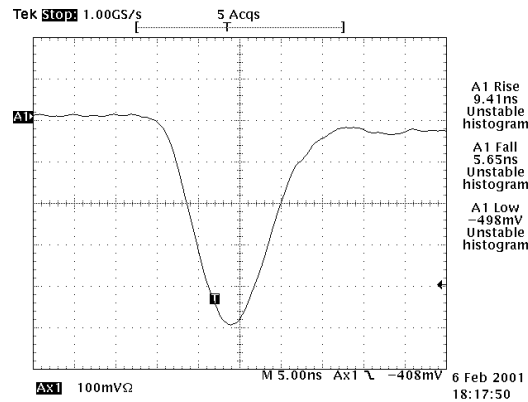


FIG. 4.7 – Partie rapide d’un signal d’anode en sortie de pré-amplificateur signant la détection d’un produit de fission : avec en abscisse 5 ns/div et 100 mV/div, la largeur d’un signal à la base est inférieure à 20 ns, et l’amplitude de l’ordre de 500 mV.

de fission et particules  $\alpha$  deviennent indiscernables en amplitude quand le détecteur est séparé de la source par 2 autres détecteurs qui doivent être traversés, et dans lesquels la perte d’énergie est grande pour le PF.

## 4.4 Une disposition originale de détecteurs et de cibles

### 4.4.1 Choix des caractéristiques des cibles et de leur support et conséquences

Nous avons discuté de la nécessité d’utiliser des cibles minces. De plus, afin de s’affranchir des contributions des isotopes autres que celui mesuré, les cibles doivent être, autant que possible, isotopiquement pures. Si elles ne sont pas parfaitement pures, il faut connaître précisément leur composition.

Nous avons vu que l’inhomogénéité de la cible entraine en compte dans les calculs de taux de réaction, aussi nous assurerons nous d’une homogénéité globale des cibles, limitant ainsi les singularités, cependant nous devons être capables d’en établir précisément la cartographie.

Des considérations de disponibilité de faisceau motivent la demande d’un temps de faisceau le plus court possible : on peut alors multiplier le nombre de cibles, pour optimiser l’efficacité de mesure.

En satisfaisant aux contraintes de sécurité liées à la radiotoxicité de l’isotope considéré, et de ceux avec lesquels il est en équilibre, et ce dans la limite de masse totale disponible de matériaux, on peut placer plusieurs cibles les unes à la suite des autres, et les mesurer simultanément.

Pour limiter la production de produits parasites les matériaux de support doivent être choisis avec précaution. Des feuilles d’aluminium de 2  $\mu\text{m}$  d’épaisseur ont été retenues pour les dépôts

qui nécessitent solidité et conduction.

Un compromis entre la finesse nécessaire à la sortie de PF sans perte importante d'énergie dans la cible pour assurer une bonne efficacité de détection, et l'épaisseur suffisante pour maintenir un taux de comptage raisonnable s'obtient avec une épaisseur de cible de  $300 \mu\text{g.cm}^{-2}$ . Pour fixer les idées sur les ordres de grandeur, pour les isotopes concernés, dont la masse atomique molaire varie entre 208 et 238, l'épaisseur correspond à quelques dixièmes de  $\mu\text{m}$  soit un nombre d'atomes par  $\text{cm}^2$  d'environ  $8 \cdot 10^{17}$  atomes.

Le cadre de support de cible est en époxy cuivré.

#### 4.4.2 Choix de la disposition et conséquences d'un dispositif original

Le faisceau de neutrons entre perpendiculairement aux détecteurs, la cible étant parallèle aux détecteurs entre lesquels elle est placée. Une cellule PPAC - Cible - PPAC et le principe de détection sont représentés sur la figure 4.8.

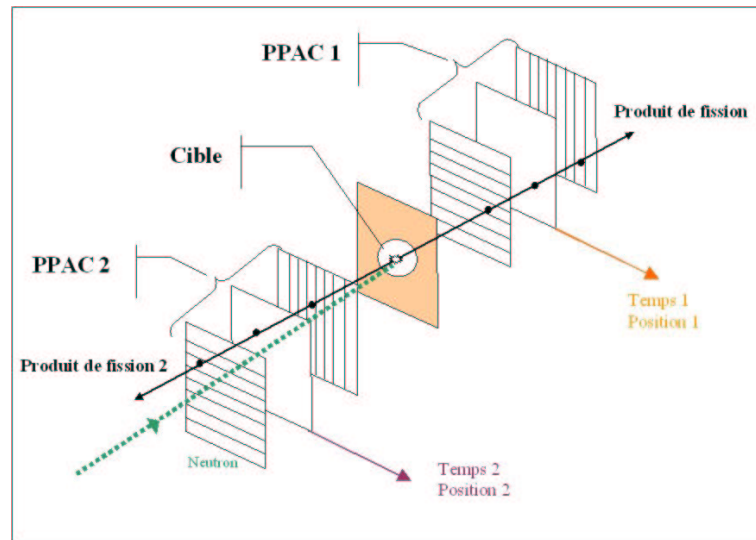


FIG. 4.8 – Une cellule PPAC - Cible - PPAC : principe de détection des 2 produits de fission issus d'une cible placée entre 2 PPACs, perpendiculairement au faisceau de neutrons.

Cette zone morte est d'ailleurs d'autant plus faible, que le détecteur est près de la cible.

En rapprochant au maximum la cible de la surface utile des détecteurs, l'angle solide de détection est donc d'autant plus élevé. L'efficacité géométrique est ainsi optimisée. Ceci limite encore l'encombrement. Une surface utile de détection (de  $20 \text{ cm} \times 20 \text{ cm}$ ) accolée aux cibles de 8 centimètres de diamètre, permet d'atteindre un angle solide géométrique maximal.

Cette disposition pourrait induire des phénomènes d'influence, de diaphonie entre les dé-

tecteurs. De fait ceci n'a pas été observé, car ils ont été minimisés par les couches métalliques recouvrant les supports d'électrode. En effet une couche d'or sur la couche de cuivre permet d'éviter l'oxydation et favorise la qualité des contacts électriques.

Pour nos mesures, nous avons choisi de mesurer simultanément 9 cibles distinctes, avec 10 détecteurs PPACs, parmi les 12 détecteurs qui ont été fabriqués.

#### 4.4.3 Chambre et détecteurs

L'enceinte du dispositif se doit d'être solide, transportable, ajustable aux tubes faisceau de la zone expérimentale, conforme aux normes de sécurité associées aux cibles mesurées, d'une matière diffusant le moins possible les neutrons, afin d'en minimiser le bruit de fond. Elle forme une chambre hermétique contenant du gaz à basse pression, séparée du vide du tube de vol des neutrons par des fenêtres qui doivent être le plus transparentes possibles aux neutrons.

Dans cette enceinte on prévoira un support, présentant le moins de matière possible, où détecteurs et cible pourront être placés facilement. Ce support permet de maintenir 1 cible à égale distance des 2 anodes des 2 détecteurs qui l'entourent, et donc chaque détecteur à égale distance du suivant.

La chambre de confinement est en aluminium, matériau à la fois solide et léger, et réagissant peu aux neutrons par diffusion. Deux raccords permettent de brancher la chambre au tube faisceau de 20 cm de diamètre. Des repères d'alignement sont installés sur la chambre. L'alignement au faisceau est assuré par des pieds de hauteur réglable, mais solidaires d'une plaque qui peut être fixée à la poutrelle de la salle expérimentale. Le schéma et une photo du dispositif sont observables sur la figure 4.9.

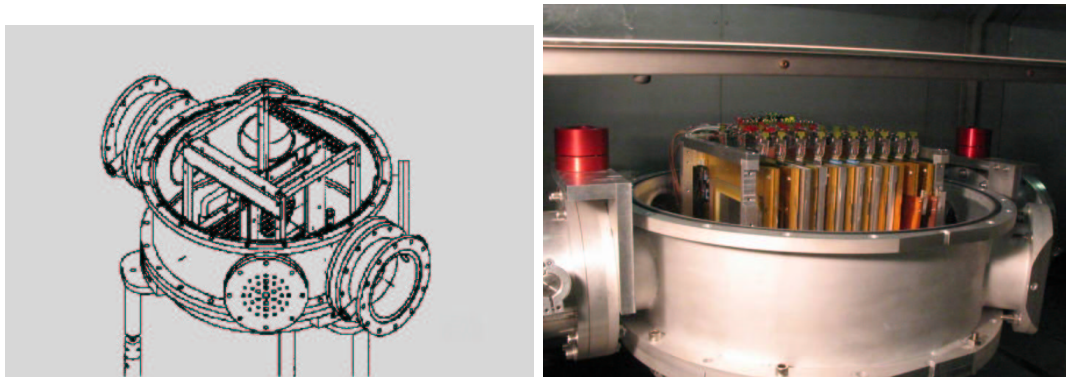


FIG. 4.9 – A gauche : schéma de la chambre en aluminium dans laquelle vient se loger le support. A droite : photo de la chambre en aluminium. Les cylindres rouges sont des cylindres d'alignement. Les connexions aux préamplificateurs sont visibles.

De volume minimisé (130 l) adapté au volume du support, la chambre est constituée :

- un corps de chambre de 60 cm de diamètre, d'épaisseur 6 mm,
- 2 couvercles semi-hémisphériques de 5 mm d'épaisseur,
- 2 feuilles de kapton de 125 microns d'épaisseur, ayant une pression de rupture de 5,5 atmosphères, sur les brides de raccordement au tube faisceau

En alternant détecteurs et cibles permettant de maintenir l'ensemble solidaire d'une structure cubique, on peut placer jusqu'à 9 cibles perpendiculairement au faisceau de neutrons. Grâce à un double fond sous le support, percé au niveau des rainures contenant les détecteurs, dans lequel est injecté puis extrait le gaz, une circulation de gaz peut être maintenue localement entre les électrodes des détecteurs. On observe le principe sur la figure 4.10.

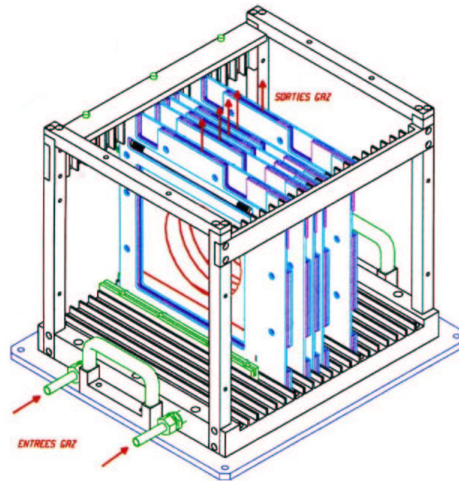


FIG. 4.10 – Support du montage où sont représentés 5 détecteurs, quelques supports de cible, et le parcours du gaz. Les 20 rainures de pas 1,7 cm peuvent contenir jusqu'à 10 détecteurs et 9 cibles.

L'étanchéité de la chambre, au niveau de son système de fermeture, de toutes les zones de raccords à l'extérieur, y compris les connecteurs électriques pour éviter toute fuite de matière radioactive vers l'extérieur.

#### 4.4.4 Régulation de gaz et chambre de stockage

L'ensemble du dispositif baigne donc dans un gaz (isobutane ou  $C_3F_8$ ) à basse pression. En assurant une circulation de gaz entre les électrodes des détecteurs les ions créés par le passage des produits de fission sont entraînés vers la pompe d'extraction.

Lors des opérations de pompage, ou de mise à la pression atmosphérique des tubes de trans-

port de neutrons, la pression dans la chambre est ajustée de manière autonome, par un système de pompage (on pompe dans la chambre à une pression inférieure à 0,01 mbar avant de la remplir de gaz) et d'entrée d'air qui lui sont propres. Cependant pour éviter toute contrainte sur les feuilles de kapton, il convient de synchroniser les opérations de pompage ou de remplissage.

Pendant les mesures, la pression et le débit de gaz sont maintenus par une usine de régulation de gaz, pouvant être contrôlée de manière automatique ou manuelle, localement ou à distance, et fournissant les sécurités nécessaires en cas de problème (seuils de pression, isolement de la chambre).

Pour les mesures sur l' $^{234}\text{U}$ , qui produit par désintégration  $\alpha$  des dégagements de  $^{220}\text{Rn}$  (voir tableau A.2 et A.4), on stockera l'air, pompé de l'enceinte des détecteurs vers un volume de stockage annexe, pendant au moins 4 jours (pour la décroissance du  $^{212}\text{Pb}$  ayant 10 h de période) avant d'évacuer le gaz filtré vers l'extérieur.

#### 4.4.5 Mise en place des cibles

Dans le support 2 systèmes ont été retenus pour la mise en place des cibles. Dans un premier temps des réglettes ajustables aux rainures du support ont permis de glisser les cibles sur leur support par le côté. Munis d'un système de blocage à vis, les supports sont maintenus immobiles entre les détecteurs : c'est le système où les cibles sont vissées. Pour la campagne suivante, durant laquelle les cibles ont pu être remplacées plusieurs fois, et ce le plus rapidement possible, en raison de leur radioactivité, un coffrage en aluminium enclenché dans les rainures entre les détecteurs est muni d'une fente par laquelle les cibles peuvent être glissées par le haut, tout en maintenant les détecteurs protégés. Les couches de dépôts sont placés en aval du faisceau pour toutes les campagnes.

### 4.5 Description détaillée des cibles

#### 4.5.1 Liste et disponibilité des isotopes mesurés

Les cibles références sont l' $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ . Les cibles mesurées à ce jour sont le  $^{232}\text{Th}$ , l' $^{234}\text{U}$ , le  $^{237}\text{Np}$  et l' $^{233}\text{U}$ , le  $^{209}\text{Bi}$  et le plomb naturel. Les propriétés physiques et chimiques des noyaux cibles sélectionnés ont été vues dans le paragraphe 2.4. Des cibles isotopiquement pures, de grande surface et d'épaisseur typique de  $300 \mu\text{g.cm}^{-2}$  ont été fabriquées. Le composé initial de la matière première utilisée pour les fabriquer est donné dans le tableau 4.2 Ces cibles se présentent en général sous forme d'oxydes. Les cibles proviennent de divers endroits : stocks de l'IPNO ( $^{232}\text{Th}$ ), CSNSM ( $^{235}\text{U}$ ), Geel ( $^{234}\text{U}$ ). Disponibles en petites quantités, elles sont rares

et chères<sup>4</sup>.

Présentation et origine :

Isotope	Composé initial	Masse de composé disponible	Origine	Dépôt
<sup>235</sup> U	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	≈ 40 mg	CSNSM	électrodéposition
<sup>238</sup> U	U métal séparé isotopiquement	≈ 30 mg	CSNSM	électrodéposition
<sup>209</sup> Bi	métal			évaporation
plomb nat.	métal			évaporation
<sup>232</sup> Th	nitrate de thorium hydraté	≈ 40 mg × 20	IPNO	électrodéposition
<sup>234</sup> U	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	≈ 80 mg	JRC Geel	électrodéposition
<sup>237</sup> Np	NpO <sub>2</sub>		2 lots : CEA (cible 1) et JRC Geel (cible 2 à 8)	électrodéposition
<sup>233</sup> U	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>	≈ 50 mg		électrodéposition

TAB. 4.2 – Cibles : présentation et origine

Elles présentent parfois une radioactivité qui implique une manipulation délicate, à la fabrication (temps d'exposition minimisé, ou boîte à gants) et à l'utilisation (systèmes de confinement, système d'évacuation des gaz toxiques soumis à une sévère réglementation).

#### 4.5.2 Obtention et séparation des isotopes

L'<sup>238</sup>U s'obtient par séparation magnétique à partir de l'uranium naturel, dont il est l'isotope majoritaire.

La séparation isotopique s'est effectuée au séparateur du CSNSM, appelé SIDONIE, qui a permis d'obtenir de l'<sup>238</sup>U très pur.

L'<sup>234</sup>U vient de Russie et s'obtient par capture de neutron sur l'<sup>233</sup>U.

Le <sup>232</sup>Th est le seul isotope du thorium à l'état naturel que l'on extrait de la monazite.

Le <sup>237</sup>Np s'obtient en réacteur par captures successives sur l'<sup>235</sup>U.

---

<sup>4</sup>550 euros le lot de 60 mg d'<sup>234</sup>U par exemple.

### 4.5.3 Méthodes de fabrication des cibles

#### • Implantation

Pour les premières mesures tests, l'optimisation des supports, des épaisseurs (seulement  $100 \mu g.cm^{-2}$ ) et diamètres (seulement 1,5 cm) des dépôts n'ont pas pu être respectés en raison des quantités trop faibles disponibles d'actinides, cependant le diamètre était compatible avec la taille du faisceau. Leur dépôt s'est fait par implantation sur mylar aluminisé auprès de SIDONIE. Des dépôts très purs sont obtenus, mais la méthode ne peut s'appliquer à des isotopes très radioactifs, ni pour des surfaces étendues (diamètre 8 cm).

#### • Evaporation

Les cibles étendues de  $^{209}Bi$  et de  $^{nat}Pb$  ont été évaporées sous vide sur une grande surface de mylar de  $1,5 \mu m$  d'épaisseur et de 12 cm de diamètre.

#### • Electrodeposition

Le support qui a pu être utilisé pour l'électrodeposition est une feuille d'aluminium de  $10 cm * 10 cm$ , de  $2 \mu m$  d'épaisseur. Il s'agit de déposer environ 15 mg d'isotope sur ce support correspondant à  $300 \mu g.cm^{-2}$ . La pureté du dépôt est de 99,5 %. La mise au point de la méthode a été faite en utilisant des cibles de même type, comme le lanthane. Des mesures par rétrodiffusion Rutherford ont permis d'améliorer l'homogénéité des dépôts finaux.

La technique utilisée par les radiochimistes du laboratoire est l'obtention d'un dépôt par électrolyse dans un solvant organique (milieu alcoolique : isopropanol) rendu conducteur par une faible quantité d'acide nitrique. Elle consiste à déposer les ions actinides sous forme d'oxyde ou d'hydroxyde sur la cathode constituée par la feuille d'aluminium de  $2 \mu m$  qui servira de support. Celle-ci est fixée sur un support d'inox et une tension est imposée entre les 2 électrodes en milieu alcoolique agité (molecular plating [118]). L'ensemble support/dépôt est ensuite étuvé (température :  $120^\circ C$ ) pour éliminer les traces d'alcool et d'eau. L'étape suivante : la calcination à  $350^\circ C$ , étape favorisant l'adhérence, n'a pu se faire à la température habituelle ( $550^\circ C$ ) en raison de la fragilité du support. En outre, l'épaisseur requise aurait justifié un dépôt en plusieurs étapes que la fragilité des supports a empêché : les 15 mg d'isotope ont donc été déposés en une seule fois. Les contraintes techniques de la fabrication des cibles ont empêché d'atteindre une grande précision dans l'homogénéité des dépôts. Ces inhomogénéités doivent être maîtrisées c'est pourquoi nous en abordons la mesure par la suite.

Les dépôts se présentent sous forme d'oxydes (pour les uranium :  $UO_2$ , pour le  $^{232}Th$ ,  $ThO_2$ ) , la masse surfacique de dépôt total est donc proche de  $400 \mu g.cm^{-2}$ .



L'incertitude sur l'uniformité estimée des cibles obtenues est d'environ 10 %.

Les cibles déposées sur leur feuille mince d'aluminium sont collées sur des supports en époxy cuivré d'épaisseur 1,5 mm, cadre de 270 mm sur 240 mm, percé d'un disque de 12 cm de diamètre, dont le centre est placé de manière à être aligné avec les centres des détecteurs dans le support.

#### 4.5.4 Importance de la composition des cibles

Pour un flux homogène, interceptant toute la cible, le nombre total de noyaux intervient dans l'équation 4.3 :

$$N_{réac.}(E) = N_{cib.} \times \sigma_{fiss.}(E) \times \Phi(E) \quad (4.9)$$

Valable en première approximation, cette relation montre l'incidence de l'incertitude sur le nombre de noyaux cible sur la précision des valeurs de sections efficaces.

A un degré plus haut de précision, on prend en compte l'inhomogénéité de la cible et du flux en identifiant l'origine des produits de fission détectés. Il est clair (équation 4.2) que l'incertitude sur le nombre de noyaux d'une surface élémentaire de la cible engendre une incertitude sur la détermination de la section efficace associée à la cible.

Le flux de neutrons incidents est déterminé à partir des cibles de référence, dont la section efficace est connue avec une bonne précision (1% pour l' $^{235}\text{U}$ ). L'incertitude sur le nombre de noyaux d'une surface élémentaire de la cible référence a également un impact crucial sur la précision de la détermination du flux incident et de sa répartition spatiale (équation 4.8).

Pour toutes les cibles, on mesure le nombre total de noyaux contenu dans la cible et les écarts locaux en densité de noyaux sur la cible. En vue d'obtenir une précision de 1% sur la quantité totale d'isotope et de 2% sur l'homogénéité des dépôts, on détermine le nombre d'atomes par des méthodes précises utilisant la radioactivité connue et identifiable des isotopes déposés, ou des méthodes non destructives ayant prouvé leur efficacité [119]. Nous avons utilisé la méthode de comptage de la radioactivité  $\alpha$  et nous la décrivons dans la suite.

#### 4.5.5 Nombre de noyaux et cartographie des cibles

Pour certains isotopes, les quantités admises par les autorités suisses et manipulables sur le site du CERN ont été limitées :  $M_{max}(^{232}\text{Th}) = 60 \text{ mg}$ ,  $M_{max}(^{234}\text{U}) = 45 \text{ mg}$ . Nous présentons ici les résultats des mesures effectuées sur les cibles effectivement utilisées lors des mesures.

##### • Nombre de noyaux total par comptage alpha intégré

On détermine le nombre total de noyaux contenus dans les cibles d' $^{235}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{233}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$  par la mesure de leur radioactivité  $\alpha$ , suffisante pour effectuer un comptage avec

une bonne statistique en un temps raisonnable. La mesure intégrée se fait sous vide, grâce à un détecteur à jonction Si placé à une distance  $D = 15$  ou  $30$  cm de la cible. Les particules  $\alpha$  sont détectées derrière un diaphragme de  $15,96$  mm, comme indiqué sur la figure 4.11.

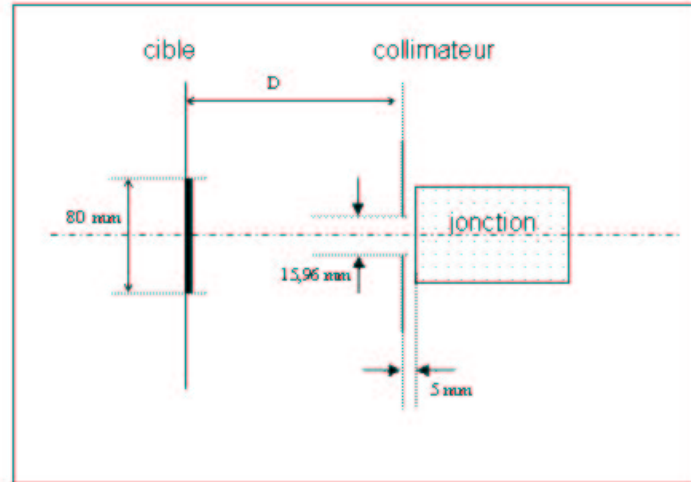


FIG. 4.11 – Montage expérimental pour la mesure par comptage alpha intégré du nombre total de noyaux dans les cibles. La distance cible collimateur  $D$  varie selon les cibles.

L'incertitude statistique est inférieure à 1%, pour des temps de mesures permettant d'obtenir entre  $10^4$  et  $10^5$  coups (typiquement une dizaine de minutes pour l' $^{234}\text{U}$ , quelques jours pour le  $^{232}\text{Th}$ ). L'incertitude sur la radioactivité par unité de masse est dominée par l'incertitude sur la période de l'isotope. Connue avec moins de 0,15 % de précision pour l' $^{235}\text{U}$  et l' $^{233}\text{U}$ , elle peut atteindre 0,46% pour le  $^{237}\text{Np}$ . L'incertitude sur la détermination de l'angle solide de détection a également été prise en compte (soit 0,6% à 0,7%). En effet, le diamètre du collimateur est déterminé avec une précision de 0,01 mm. La distance cible - collimateur et le diamètre de la cible avec une précision de 0,5 mm à 1 mm. L'impureté isotopique des dépôts est prise en compte, par exemple dans le cas de l' $^{234}\text{U}$ , qui présente des traces (0,0022%) d' $^{232}\text{U}$  ayant une importante activité  $\alpha$ , ou bien le  $^{232}\text{Th}$ , dont la contribution alpha des descendants est retranchée (Tableau 4.3 et paragraphe suivant). L'incertitude sur la part d'activité mesurée associée à l'isotope concerné est de 0,3%. L'incertitude totale est obtenue en sommant les carrés des incertitudes relatives.

### • Origine et contribution des impuretés dans les cibles

Le tableau 4.3 indique les compositions isotopiques des cibles. La connaissance de cette composition est importante pour les mesures du nombre de noyaux d'isotopes présents dans les cibles (correction de la radioactivité  $\alpha$  provenant des autres isotopes), mais aussi pour les mesures elles-mêmes. Du point de vue de la radioactivité  $\alpha$  nous ne pouvons pas négliger la contribution des impuretés à la radioactivité. La maîtrise de la contribution des impuretés conditionne la précision des mesures du nombre de noyaux des cibles par comptage.

La contribution  $\alpha$  a été mesurée par spectrométrie  $\alpha$ , et la contribution de l'activité spécifique de l'isotope considéré est extraite. La contribution des isotopes parasites a été obtenue en sélectionnant l'énergie des  $\alpha$  émis (Spectres de la figure 4.12). Ainsi, par exemple, comme on peut le lire dans le tableau 4.3, le  $^{232}\text{Th}$  ne contribue-t-il qu'à hauteur de 30,5 % du nombre total de particules  $\alpha$  émises.

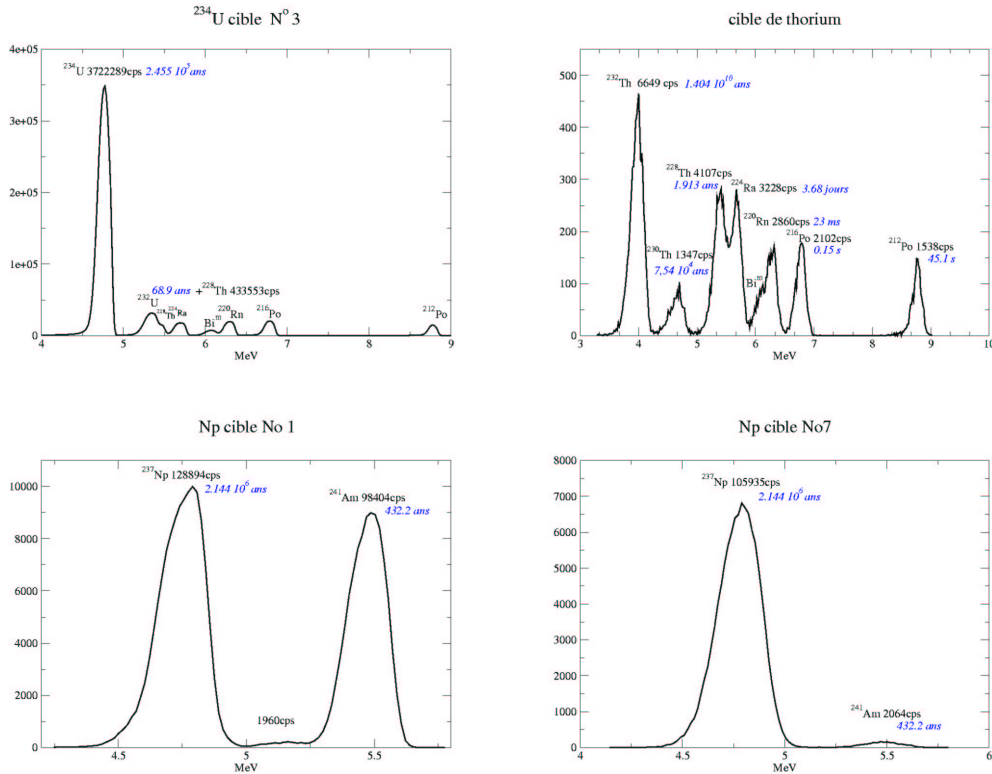


FIG. 4.12 – Spectres de spectrométrie  $\alpha$  des cibles d' $^{234}\text{U}$ , de  $^{232}\text{Th}$ , et de  $^{237}\text{Np}$  (2 lots différents), sur lesquels on peut observer la contribution relative des impuretés présentes à la radioactivité  $\alpha$ . Le nombre total de coups pour tout le spectre de l' $^{234}\text{U}$  est de 4 893 641, et 3 722 289 coups sont comptés entre 4 et 5 MeV.

La composition isotopique de l' $^{235}\text{U}$  a été quant à elle mesurée par spectrométrie de masse au CEA Saclay.

Commentons les compositions isotopiques des cibles résumées dans le tableau 4.3. L' $^{234}\text{U}$  contient une faible quantité d' $^{232}\text{U}$  (0.0022%). En effet, l' $^{234}\text{U}$  s'obtient par capture de neutron ( $n, \gamma$ ) sur l' $^{233}\text{U}$ . Et par réaction ( $n, 2n$ ), l' $^{233}\text{U}$  peut également donner de l' $^{232}\text{U}$ . La courte période de ce dernier et la formation de ses descendants (voir tableau A.2 et A.4 en annexe :  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{224}\text{Rn}$ ,  $^{220}\text{Rn}$ ,  $^{216}\text{Po}$ ,  $^{212}\text{Po}$ ) implique une radioactivité  $\alpha$  liée à la présence des ces isotopes.

Les cibles de  $^{232}\text{Th}$  présentent les mêmes descendants que l' $^{232}\text{U}$  (tableaux A.3 et A.4), mais elles présentent également une pollution de  $^{230}\text{Th}$ , issue de la décroissance de l' $^{238}\text{U}$  présent dans le minerai de thorium naturel (monazite) (voir tableaux A.7 et A.8).

Dans le cas des deux lots de  $^{237}\text{Np}$ , nous avons également obtenu la contribution de l' $^{241}\text{Am}$  à la radioactivité alpha de la cible, et montré que le lot dont la cible 1 est extraite contient en proportion 40 fois plus d' $^{241}\text{Am}$  que l'autre lot. Le  $^{237}\text{Np}$  s'obtient dans les réacteurs où l' $^{238}\text{U}$  est majoritaire, et à l'origine de la production d' $^{241}\text{Am}$ .

#### • Résultats

Les résultats donnent la masse d'isotope présent dans chaque cible, en utilisant l'activité par mg d'isotope (Annexe A.3).

Les résultats sont synthétisés dans le tableau 4.4 pour les cibles étendues utilisées pour les mesures.

#### • Cartographie par comptage alpha : mesures d'homogénéité

On mesure ensuite l'émission alpha issue d'une surface élémentaire des cibles les plus radioactives ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{233}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ) pour déterminer les variations d'homogénéité. On balaye les cibles avec un détecteur collimaté (diamètre=16 mm) placé à 23 mm de leur surface masquées par un diaphragme de 3,5 mm de diamètre comme représenté sur la figure 4.13, avec des pas différents selon les cibles (1mm et 3,5mm), afin de déterminer la répartition des noyaux sur la surface. On obtient l'écart entre les nombres de noyaux dans les surfaces élémentaires.

On représente les résultats sur un graphe bidimensionnel donnant l'homogénéité de la cible. On représente également la projection suivant le diamètre des cibles.

La méthode est valide, car sur la cible 2, un creux est observé sur la droite de la cible, observable sur la figure 4.14, creux observable visuellement également sur la cible réelle (pas d'adhérence du dépôt sur le support sur cette zone) et les dimensions de la cible sont bien reproduites.

Les détails sur toutes ces mesures peuvent être consultés dans la référence [120].

Cible	Identification (#)	Isotopes	Atomes %	Activité alpha et remarques
$^{234}\text{U}$	1 à 4	$^{232}\text{U}$	0,0022	alpha : 0,3 MBq x 6 dégagement de $^{220}\text{Rn}$ et gamma : 2,6 MeV
		$^{234}\text{U}$	99,0798	76,06% 3 MBq alpha
		$^{235}\text{U}$	0,0774	
		$^{236}\text{U}$	0,055	
		$^{238}\text{U}$	0,7856	
			Activité de 15 mg :	5 Mbq/cible
$^{233}\text{U}$	1 - cible unique	$^{233}\text{U}$	99,949	
		$^{234}\text{U}$	0,05	
		$^{235}\text{U}$	0,001	
		$^{238}\text{U}$	0,00013	
			Activité de 15 mg :	5,4 MBq/cible
$^{237}\text{Np}$	1 lot CEA	$^{237}\text{Np}$	99,999	98,1%
		$^{241}\text{Am}$	0,0004	1,9%
			Activité de 15 mg :	0,6 MBq/cible
$^{237}\text{Np}$	2 à 7 lot GEEL	$^{237}\text{Np}$	99,984	56,71%
		$^{241}\text{Am}$	0,015	43,3%
			Activité de 15 mg :	0,8 MBq/cible
$^{235}\text{U}$	1 - cible unique	$^{234}\text{U}$	0,696	1602 Bq/mg soit 24kBq
		$^{235}\text{U}$	93,20	74,532 Bq/mg soit 1kBq
		$^{236}\text{U}$	0,251	6,012 Bq/mg soit 90Bq
		$^{238}\text{U}$	5,856	0,73 Bq/mg soit 10Bq
			Activité de 15 mg :	25 kBq/cible
$^{232}\text{Th}$	1 à 5	$^{232}\text{Th}$	$\approx 100$	alpha/descendants : 30,46%
		$^{230}\text{Th}$		alpha : 0,06%
			Activité de 15 mg :	60 Bq/cible
$^{238}\text{U}$	1 - cible unique	$^{238}\text{U}$	100	
			Activité de 15 mg :	190 Bq/cible
$^{209}\text{Bi}$	1 - cible unique	$^{209}\text{Bi}$	100	
nat. Pb	1 - cible unique	nat. Pb	100	

TAB. 4.3 – Cibles : composition isotopique et décroissance  $\alpha$ .

Isotope	Cible	Activité inté- grée de l'isotope (Bq)	Masse d'isotope (mg)	Incertitude relative (%)
$^{235}\text{U}$	1	1097	13,7	0,7
$^{234}\text{U}$	1	3030000	13,1	0,7
$^{234}\text{U}$	2	3080000	13,4	0,7
$^{234}\text{U}$	3	3110000	13,5	0,7
$^{237}\text{Np}$	1	372000	14,2	0,9
$^{237}\text{Np}$	6	418000	16,0	0,9
$^{237}\text{Np}$	7	398000	15,24	0,9
$^{237}\text{Np}$	8	415719	15,9	0,9
$^{233}\text{U}$	1	3720000	10,43	0,7
$^{238}\text{U}$	1	148	11,9	1
$^{232}\text{Th}$	1	43	10,6	1,2
$^{232}\text{Th}$	2	42	10,3	1,3
$^{232}\text{Th}$	3	41	10,2	1,4
$^{232}\text{Th}$	4	47	11,6	1,3
$^{232}\text{Th}$	5	47	11,4	1,1

TAB. 4.4 – Cibles : mesure par comptage alpha intégré du nombre total de noyaux de l'isotope majoritaire considéré.

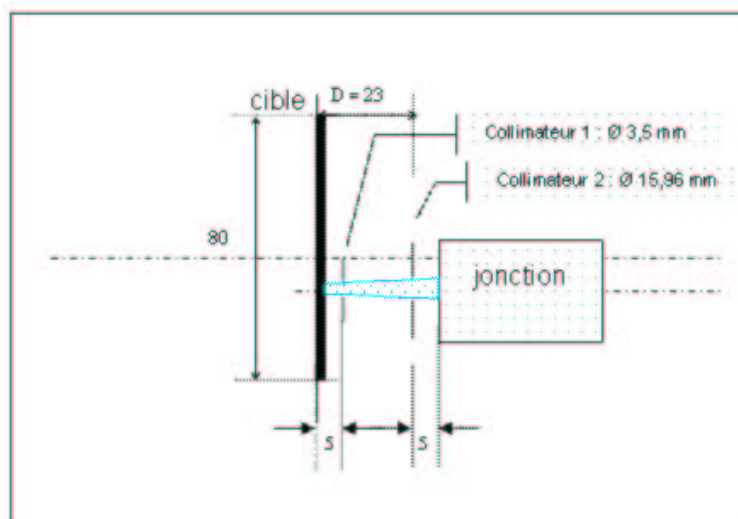


FIG. 4.13 – Montage expérimental pour la mesure par comptage alpha balayant les cibles, afin d’obtenir une cartographie rendant compte des inhomogénéités. L’ensemble formé par la jonction et les deux collimateurs centrés est mobile et balaye la cible fixe.

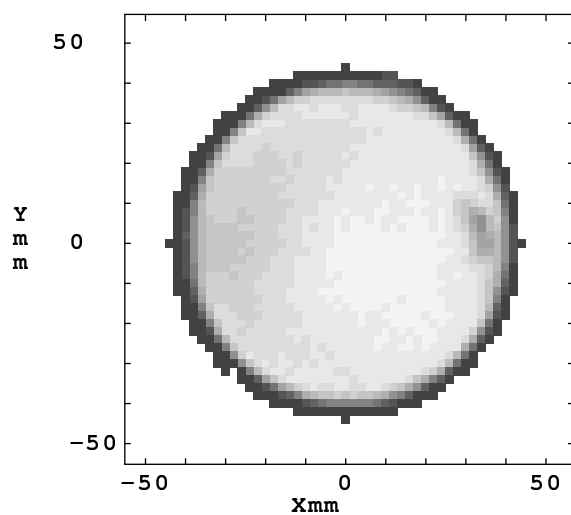


FIG. 4.14 – Représentation bidimensionnelle des inhomogénéités de la cible numéro 2 d’  $^{234}\text{U}$ . Unités arbitraires. Densité croissante du plus foncé au plus clair. Pas de 7 %.

- **Cartographie par diffusion de protons**

Pour les actinides  $^{232}\text{Th}$  et  $^{238}\text{U}$ , pour lesquels les temps de mesure seraient prohibitifs par la méthode précédente, on utilisera la méthode de rétrodiffusion Rutherford de protons.

## 4.6 Simulations préliminaires à la mesure

En synthétisant les différentes informations décrites plus haut, on extrait les paramètres des simulations. L'optimisation du dispositif se fait en limitant les sources de bruit de fond, de perte d'information, et en maximisant les taux de comptage.

Les FF sont, comme le décrit le paragraphe 2.1.3, des ions<sup>5</sup> de masses atomiques  $A$  comprises entre 70 et 170 u, et qui se partagent une énergie d'environ 160 MeV. Si le produit de fission est lourd il emportera une énergie plus petite que celui émis simultanément, moins lourd. Ils ont un comportement particulier dans la matière en raison de leur grand état de charge, qui diminue progressivement lors de leur parcours, au cours duquel ils récupèrent des électrons. Bien que leur vitesse diminue, leur charge effective diminue de telle façon que leur perte d'énergie, importante dès le départ, diminue dès leur entrée dans le matériau. Leur libre parcours dans la matière est 2 fois moins long que celui d'un alpha de 5 MeV, l'énergie par nucléon étant nettement plus faible, malgré une énergie initiale de quelques dizaines de MeV.

L'amplitude du signal collecté dépend étroitement de la quantité de charges créées par l'ion incident. Très chargés ils vont déposer très vite beaucoup d'énergie, plus il est lourd, plus le PF aura du mal à traverser la matière. Pour considérer une situation extrême, il faut que le moins énergétique d'entre eux puisse traverser toute l'épaisseur de la cible dont il est extrait, le support de la cible, une cathode, l'anode et au moins arriver dans l'espace intermédiaire entre les 2 dernières électrodes. Tout ceci en ayant parcouru le plus long chemin possible dans la matière, c'est à dire ayant été émis avec un grand angle par rapport à la normale à la cible.

Si ce PF de basse énergie dépose toute son énergie dans le détecteur, l'amplitude du signal mis en forme par le préamplificateur sera faible, et si nous nous intéressons à cette quantité, nous devrions évaluer la surface du signal. Si une particule légère comme un noyau alpha de quelques MeV est détectée, elle produira un signal de faible amplitude également. L'amplitude ne nous indique donc pas la nature du noyau détecté de manière univoque : une faible amplitude peut correspondre à un alpha, à un PF très lourd de faible énergie, à un PF moyen traversant beaucoup de matière.

Dans le gaz, les FF ont un libre parcours moyen de quelques centimètres à 1 atmosphère (bien supérieur à l'épaisseur de gaz rencontrée dans les détecteurs), mais dans le mylar, dans

---

<sup>5</sup>chargés positivement jusqu'à +20 e.



l'aluminium et surtout dans leur cible d'origine, d'une dizaine de micromètres seulement.

#### 4.6.1 Angle solide et efficacité de détection

Le support mécanique permet une grande souplesse d'utilisation : on peut placer les cibles à différentes distances des détecteurs, le rapprochement maximal entre feuille de cible et anode d'un détecteur étant de 1,5 cm. Cette distance minimale permet de maximiser l'angle solide.

Il est important de remarquer que tous les produits de fission ne sont pas arrêtés dans les détecteurs entourant la cible dont ils sont issus, cela signifie qu'un produit de fission peut être détecté dans plusieurs détecteurs successifs, pour peu qu'il soit animé d'une énergie suffisante, et qu'il perde peu d'énergie dans les milieux. Cette situation se rencontre notamment aux angles faibles de la trajectoire par rapport à la perpendiculaire au plan de cible (ou plan de détecteur), puisque le parcours dans la matière est alors minimal.

Les simulations ont permis de mettre en évidence l'efficacité géométrique de détection d'un dispositif comme celui que nous venons de décrire, pour lequel l'acceptance géométrique est optimisée. L'efficacité géométrique est de 100 % pour des PF émis avec un angle inférieur à  $74^\circ$ . Aucun PF n'est détecté au delà d'un angle de  $82^\circ$ .

L'efficacité d'un PPAC varie en fonction de l'ion, en effet la perte d'énergie dans les milieux est différentes selon la masse du PF. Un produit de fission d'énergie minimale 50 MeV ne doit pas avoir perdu toute son énergie avant d'arriver au bout d'un détecteur pour être détecté, c'est à dire après avoir traversé, au pire, la cible, son support, le gaz, 3 épaisseurs d'électrodes. L'angle maximal de détection est déterminé par la longueur maximale que peut parcourir le fragment dans ces différents matériaux pour se retrouver encore avec quelques MeV entre les 2 dernières électrodes.

Plus l'angle d'émission est grand, plus le chemin parcouru dans la matière est grand, et plus le noyau émis est lourd - donc moins il est énergétique - plus il aura de chance d'être arrêté avant d'être détecté. Les fissions pour lesquels un PF lourd prend la direction du support de cible, et le PF léger la surface libre de celle-ci seront supprimées. Aussi l'efficacité de détection est limitée par l'absorption des fragments dans la cible elle-même, dans le support de cible et la première partie du détecteur.

Pour que l'énergie résiduelle du fragment soit supérieure à 1 MeV, seuls les PF émis avec un angle inférieur à  $60^\circ$  environ sont détectés à 100%. On observe la variation de probabilité de transmission avec différentes énergies résiduelles sur la figure 4.15.

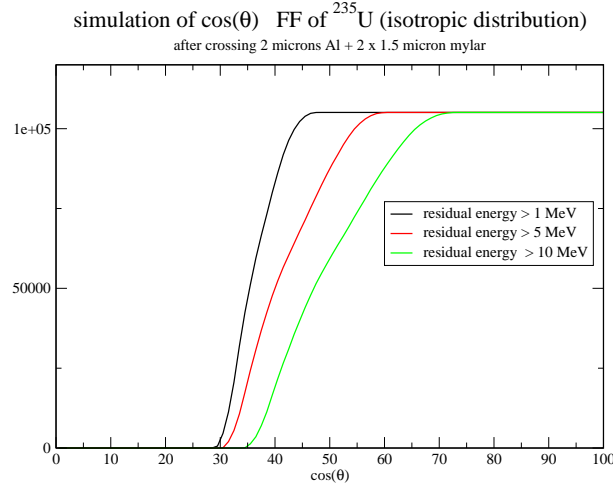


FIG. 4.15 – Distribution simulée, en fonction du cosinus de l'angle d'émission, des PF transmis avec différentes énergies résiduelles en sortie de support de cible et de 2 électrodes de PPAC.

#### 4.6.2 Calculs d'atténuation du flux

L'empilement de détecteurs sur le chemin du faisceau a été simulé : 2 fenêtres de  $125\ \mu\text{m}$  de kapton ( $\text{C}_{23}\text{O}_5\text{N}_2\text{H}_{10}$ ),  $45\ \mu\text{m}$  de mylar ( $\text{C}_5\text{H}_4\text{O}_2$ ) soit  $6\ \text{mg}/\text{cm}^2$ , et  $6\ \mu\text{m}$  d'aluminium en tout. Pour évaluer la perturbation du flux de neutrons due à l'empilement, on utilise les sections efficaces totales de réactions ENDF-B6. A cela on ajoute la contribution de 10 cibles d'actinides de  $300\ \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$  chacune sur  $2\ \mu\text{m}$  d'aluminium, soit  $2,7\ \text{mg}/\text{cm}^2$  d'actinides et  $18\ \mu\text{m}$  d'aluminium. La contribution majeure à l'absorption du flux entre l'amont et l'aval du dispositif est due aux 2 feuilles de kapton isolant la chambre du vide. Au dessus de  $0,1\ \text{eV}$ , l'absorption totale due aux fenêtres et aux différents supports ne dépasse pas 1 %, comme on peut le voir sur la figure 4.16. On conclut de ces calculs la possibilité de faire les mesures prévues en simultanée avec d'autres détecteurs sur des cibles placées après notre montage.

Au dessus de  $0,1\ \text{eV}$ , entre la première cible et la dernière, l'absorption et la diffusion des neutrons est négligeable, sauf pour quelques énergies correspondant à des résonances de diffusion : par exemple celles de l' $^{234}\text{U}$  à  $5\ \text{eV}$  ou du  $^{232}\text{Th}$  à  $70\ \text{eV}$  (voir figure 4.17). La finesse des feuilles limite donc bruit de fond et auto-absorption.

Ainsi, la faible quantité de matière dans le faisceau entre la première cible et la dernière permet de supposer que toutes les cibles sont soumises au même flux de neutrons. La divergence géométrique du faisceau entre la première cible et la dernière, distante de  $27\ \text{cm}$  est négligeable.

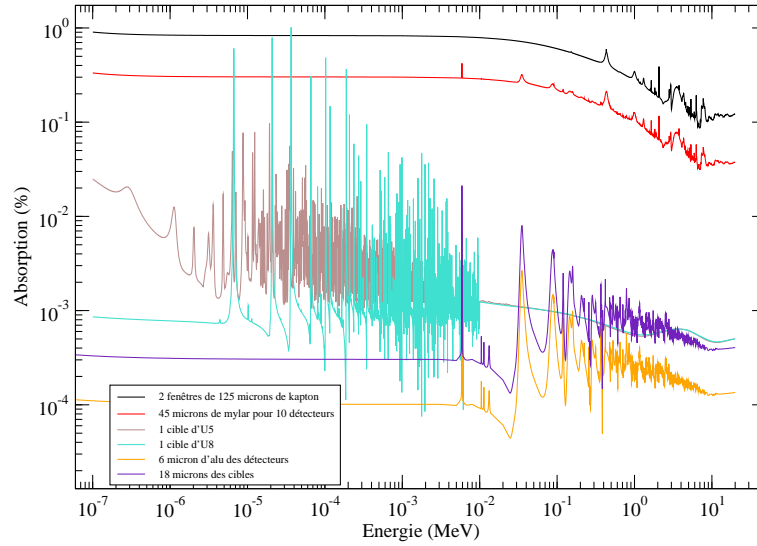


FIG. 4.16 – Perturbation du flux entre l'amont et l'aval d'un dispositif de 10 détecteurs, 9 supports de cibles dont 7 vides et 2 avec dépôt de cibles référence  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ .

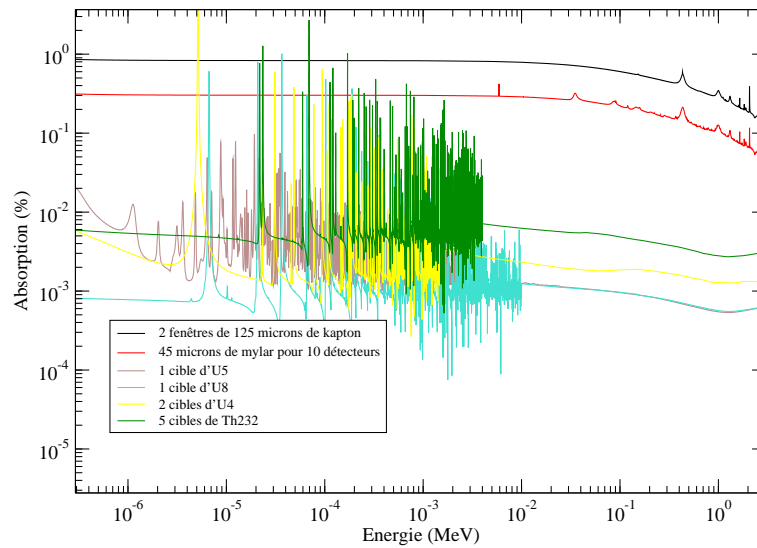


FIG. 4.17 – Perturbation du flux entre l'amont et l'aval d'un dispositif de 10 détecteurs, 9 supports de cibles sur lesquels sont supposées 5 cibles de  $^{232}\text{Th}$  et 2 cibles d' $^{234}\text{U}$ .

### 4.6.3 Taux de réaction attendus

Le taux de comptage dépend bien sûr de la cible mesurée, mais on peut se livrer à une première estimation. Avec une section efficace moyenne estimée à environ 1 barn, (elle varie, voir paragraphe sur les sections efficaces des actinides en question, entre 0.1 et 3 barns), un nombre de noyaux par  $cm^2$  d'environ  $8 \cdot 10^{17}$  et un flux intégré sur toutes les énergies de  $7 \cdot 10^5$  neutrons/ $cm^2$  par (bunch de  $7 \cdot 10^{12}$  protons), on obtient environ 0,5 fissions par  $cm^2$  par (bunch de  $7 \cdot 10^{12}$  protons), soit pour une cible pouvant atteindre environ  $50 cm^2$ , 25 fissions induites sur une seule cible par des neutrons d'énergies comprises entre 0,5 eV et 20 GeV, répartis sur 20 ms. Avec 1 bunch par supercycle, on s'attend donc à 25 fissions en 14,4 s. A ce rythme, en une journée de faisceau, on peut attendre environ  $(25 \text{ fissions} \cdot 24 \cdot 60 \cdot 60 / 14,4) = 150\,000$  fissions dans une cible de  $50 cm^2$ .

On peut estimer les temps de comptage pour la quantité de cibles disponibles, sur la base des sections efficaces évaluées. A partir des masses disponibles de matière, on détermine le nombre de cibles ayant l'épaisseur optimale calculée que l'on peut présenter aux neutrons. En s'appuyant sur les données de sections efficaces disponibles, on estime alors le nombre de neutrons nécessaires pour nombre de fissions voulu, par intervalle d'énergie, afin d'obtenir la statistique compatible avec la précision voulue. On en déduit alors, en s'appuyant sur les caractéristiques annoncées de l'installation n\_TOF, le nombre de protons, ou de "paquets" de protons. C'est alors le nombre de paquets de protons par supercycle de 14,4 s du PS qui permet d'estimer le temps de mesure, ou temps de mise sous faisceau. Cette fréquence (nombre de protons délivrés à la ligne n\_TOF par seconde) est variable d'un jour à l'autre, et c'est donc en nombre de protons qu'on raisonne pour les estimations de temps. Le nombre de bunches par supercycle importe beaucoup, un facteur 4 sur un temps de plusieurs semaines donne des mesures de plusieurs mois. De même, l'importance d'une surface de cible étendue est mise en évidence.

Pour cette estimation, il faut prendre en compte la précision ainsi que la résolution en énergie avec laquelle les mesures doivent être faites. L'incertitude statistique sur le nombre de coups enregistrés dans un intervalle d'énergie donné est inversement proportionnelle à la racine carrée du nombre de coups enregistrés. Les intervalles choisis n'ont pas la même largeur puisque la résolution nécessaire n'est pas la même à différentes énergies. En dessous de quelques centaines de keV, pour séparer les résonances, on utilisera un découpage en énergie plus fin qu'à plus haute énergie, où les taux de comptage attendus nécessitent un élargissement des intervalles en énergie.

Pour obtenir une résolution de 1 %, et une statistique permettant une précision compatible avec les besoins énoncés dans le paragraphe 2.3.4, une demande de  $10^{19}$  protons a été déposée, soit près de 4 mois de mesures à 2 bunches par cycle en continu [51], répartis sur différentes les cibles en lots de 6 feuilles d'environ  $300 \mu g.cm^{-2}$ .

#### 4.6.4 Temps moyen entre 2 fissions

La durée entre 2 fissions est en général grande pour des énergies inférieures à 1 MeV, ce qui limite les chances d'empilement, mais dès que l'énergie du neutron incident augmente, le temps moyen entre 2 fissions est réduit. Il faut de plus remarquer que le flux instantané de l'installation n\_TOF aux alentours de 1 MeV est considérable ( $n/s/cm^2$ ), aussi autour de cet énergie, les taux d'empilements peuvent être importants.

Pour la cible sur laquelle on attend un très grand taux de comptage, l' $^{233}\text{U}$ , une estimation grossière donne une durée moyenne entre 2 fissions de l'ordre de 100 ns.

Le temps moyen entre 2 signaux de fission est inversement proportionnel au nombre fissions par unités de temps, et s'exprime, d'un point de vue classique :

$$\Delta t \propto \frac{1}{\sigma * \frac{dN_{inc.}}{dt}}$$

soit, en faisant intervenir le flux par unité léthargique d'énergie :  $\frac{dN_{inc.}}{dlnE}$

$$\Delta t \propto \frac{1}{\sigma * \frac{dN_{inc.}}{dlnE} * \sqrt{E}}$$

et d'un point de vue relativiste :

$$\Delta t = \frac{1}{\sigma * N_{cib.} * \frac{dN_{inc.}}{dlnE} * \sqrt{\frac{E}{mc^2}} (2 + \frac{E}{mc^2})^{\frac{3}{2}}}$$

La dépendance en énergie de cet intervalle de temps suggère d'être attentif aux empilements de signaux à haute énergie.

## Chapitre 5

# Mesures de sections efficaces de fission avec PPACs et cibles étendues ultra-minces d'actinides sur n\_TOF

Dans la famille des détecteurs gazeux, les PPACs sont donc parfaitement adaptés à la détection en coïncidence des produits de fission émis après capture neutronique par des cibles d'actinides. Nous avons décrit, dans le chapitre précédent, comment nous avons assemblé les détecteurs PPACs et prévu un dispositif original permettant de placer 9 cibles et 10 détecteurs dans le faisceau.

Nous allons voir maintenant comment le montage de PPACs a été implanté spécifiquement auprès de l'installation n\_TOF, les périphériques particuliers et les conventions utilisées pour ces mesures.

Ensuite, un bref rappel chronologique des différentes campagnes de mesures menées entre Juin 2001 (caractérisation de l'installation et des détecteurs) et Novembre 2003, permettra de mettre en évidence les performances du dispositifs, les limites rencontrées et les améliorations réalisées. Les modalités de la dernière campagne, dont l'analyse des résultats est au cœur de ce mémoire, feront l'objet d'une description plus détaillée.

### 5.1 Dispositif de mesure auprès de n\_TOF

Les mesures se font auprès de la source de neutrons n\_TOF décrite au chapitre 3. Le faisceau tourne au mieux 24h/24 pendant une période de 6 mois (Mai-Octobre). Les premières campagnes ont permis de caractériser l'installation et les détecteurs. La figure 5.1 représente le montage. La première bride à laquelle vient s'adapter notre dispositif se situe à approximativement 183 m du

centre de cible.

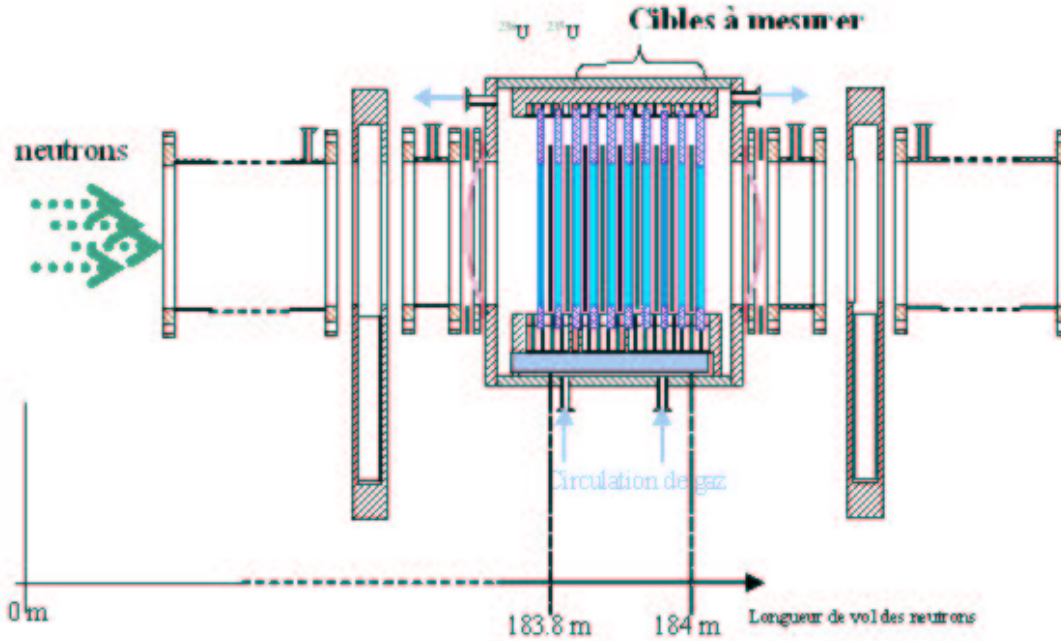


FIG. 5.1 – Montage expérimental schématisé.

### 5.1.1 Haute tension

La haute tension est délivrée par un module d'alimentation C.A.E.N. Sy 527, contrôlable à distance grâce à un système réseau et une interface de configuration et de surveillance (Versatile Power Supply control). Elle est ajustée pour chaque détecteur, de manière à minimiser les éventuels bruits observés parfois dans les signaux, tout en maximisant l'amplitude des signaux.

### 5.1.2 Configuration du dispositif, conventions

On décrira le montage expérimental en identifiant la position des détecteurs et cibles dans le support par rapport au flux de neutrons. Le motif de base de différentes configurations est schématisé sur la figure 5.2, adaptée d'un dessin de conception avec les cotations en millimètres.

La gauche et la droite utilisées pour la dénomination des côtés de la ligne à retard X ( $X_{Left}$  et  $X_{Right}$ ) sont donnés du point de vue neutron, c'est à dire avec le faisceau dans le dos. La ligne à retard Y est alors placée du côté droit, le pré-amplificateur d'anode de ce côté et au dessus des 2

pré-amplificateurs  $Y_{Bottom}$  et  $Y_{Top}$ . Les détecteurs sont numérotés de 0 à 9, le faisceau rencontre en premier le détecteur 9. Ainsi un neutron rencontre d'abord la cathode Y du détecteur 9, puis l'anode, puis la cathode X de ce même détecteur, puis il traverse le support de cible avant d'arriver sur la cible entourée par les détecteurs 9 et 8.

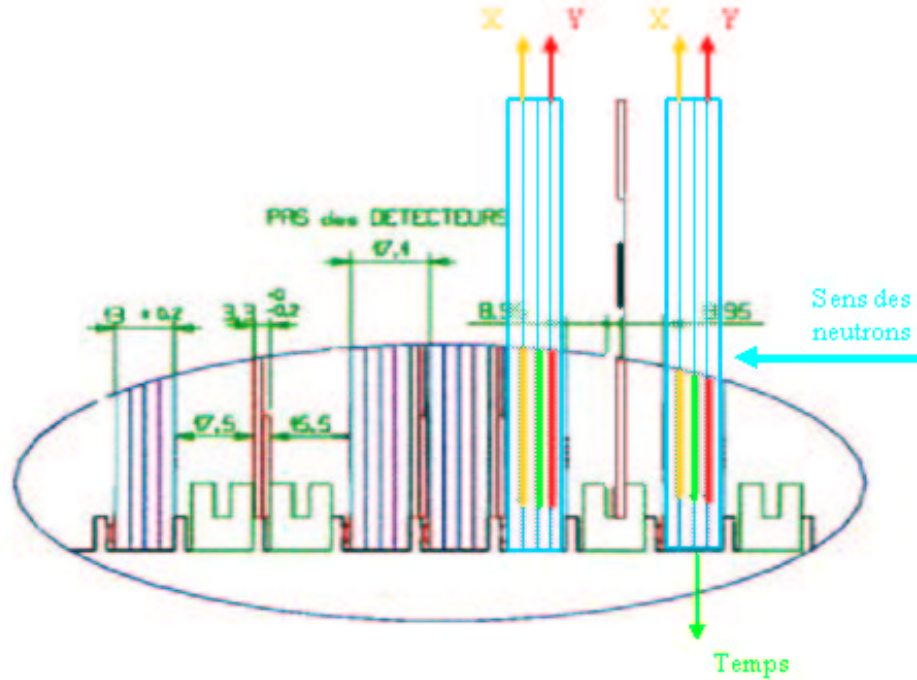


FIG. 5.2 – Dans le support de pas 17,1 mm, zoom sur 9 rainures, avec différentes positions relatives des détecteurs et des cibles. La configuration de droite est le motif de base utilisé quand 10 détecteurs et 9 cibles sont placées dans le support (cotations en mm). Les dépôts de cible sont placés en aval du faisceau.

### 5.1.3 Acquisition - FADC

Les convertisseurs analogique/numérique ou ADC utilisés en général dans les expériences de physique nucléaire sont associés à une électronique d'amplification et d'interprétation des signaux issus des détecteurs.



### • Motivations

Pour les mesures prévues sur n\_TOF, la diversité des détecteurs utilisés ( $C_6D_6$ , PPACs, MicroMegas, SiLi,  $BaF_2$  présentés dans le paragraphe 3.5.1) requiert un système d'acquisition (Data Acquisition System) polyvalent. La forme des signaux associés à chaque détecteur est très différente, et les informations à en extraire dépendent des spécifications de chacun. Dans tous les cas les exigences sont liées à la précision de détermination des temps, mais selon le détecteur on s'intéresse ou bien à l'amplitude du signal, ou bien à l'aire sous le signal, et la reconstruction des événements intéressants nécessite donc des traitements différents. De plus, il faut pouvoir résoudre les empilements qui se produisent inévitablement à haute énergie. Cette résolution implique des algorithmes compliqués prenant en compte toute l'information sur la forme des signaux, c'est pourquoi il est nécessaire d'enregistrer un échantillonnage des signaux complets.

Tous les signaux des détecteurs doivent être enregistrés en même temps pour chaque pulse de protons. Tous ces signaux à analyser sont compris dans une fenêtre en temps de l'ordre de 20 ms !

Néanmoins, étant donnée la mauvaise résolution accessible en dessous de 0,7 eV (voir figure 3.9), on peut limiter le domaine des temps pendant lequel tous les détecteurs sont actifs à 16 ms.

L'énergie maximale accessible est de l'ordre du GeV, ce qui correspond à un temps de vol de l'ordre de la microseconde. Un traitement rapide des données aux temps de vol courts est donc nécessaire : le temps mort associé à l'acquisition doit donc être minimum.

Pour les PPACs, des signaux d'amplitude variant entre quelques dizaines de mV (particules  $\alpha$ ) et quelques centaines de mV (Fragments de fission) sont attendus. La largeur à mi hauteur de la composante rapide d'un signal d'anode est de l'ordre de 10 ns (paragraphe 4.3.3 du chapitre précédent). On veut atteindre une précision de l'ordre de la nanoseconde sur les temps pour lever les ambiguïtés quand plusieurs détecteurs sont touchés, et pour une résolution en position meilleure que le mm.

Les taux de comptage sur une voie peuvent atteindre des valeurs qui nécessitent de séparer deux événements séparés de quelques nanosecondes. Les temps de transition associés à l'acquisition doivent donc être plus courts que cette durée.

### • Description générale

Le système d'acquisition développé pour n\_TOF est flexible et innovant [121]. Des Flash-ADC aussi rapides que ceux utilisés lors de nos mesures (modules Acqiris DC270 (4 canaux et 1 trigger) et DC240 (2 canaux et 1 trigger)) permettent de répondre à tous les critères que nous venons de décrire. Ils permettent en particulier d'enregistrer le signal complet issu de chaque

détecteur, en échantillonnant à une vitesse pouvant atteindre 2 GHz, avec une mémoire interne de 8 ou 16 MB et une résolution de 8 bits. Les temps d'acquisition possible selon les conditions d'utilisation sont rappelés dans le tableau 5.1.

Mémoire (MB)/Fréquence	500 MHz	1 GHz	2 GHz
8	16 ms	8 ms	4 ms
16	32 ms	16 ms	8 ms

TAB. 5.1 – Durées d'acquisition (en ms) selon les caractéristiques choisies pour les FADC.

La gamme dynamique est réglable ( $\pm 50$  mV à  $\pm 5$  V). Les données brutes sont enregistrées et aucune électronique supplémentaire n'est nécessaire. L'analyse du signal est faite a posteriori grâce à des algorithmes d'analyse dédiés à chaque détecteur. Cette méthode permet d'avoir accès au signal brut et ainsi d'améliorer le traitement de la forme du signal à la lumière des différentes situations rencontrées (empilements, bruits). La très grande quantité de données ainsi accumulées (jusqu'à 10 GB/bunch sans réduction) nécessite des capacités importantes de stockage, de transfert, et de traitement des données. Pour diminuer ces contraintes, différentes étapes de réduction des données sont effectuées.

### • Fonctionnement

L'acquisition et sa configuration est contrôlée grâce à une interface graphique permettant aux utilisateurs de faire tourner le programme "Run Control". Le signal rapide correspondant à l'instant d'impact des protons sur la cible est envoyé par le PS, et distribué à chaque module pour servir de déclencheur. Lorsqu'un run est lancé, à chaque impact des protons sur la cible de spallation, une fenêtre de  $16 \text{ ms}^1$  est ouverte durant laquelle les flash - ADC numérisent la sortie des détecteurs sur 256 canaux. Un boîtier (crate) comporte entre 2 et 4 modules composés chacun de 2 ou 4 canaux plus un canal de déclenchement. Les données internes (8MB) sont transférées (en 0,7 s via 100 MB PCI-bus) vers des PC (stream) associés aux boîtiers, qui effectuent alors une compression des données par application d'un seuil et suppression de zéro. Parallèlement, un groupe de données supplémentaires ("index stream" ou stream 0) contient des informations sur les conditions globales de la mesure (faisceau, ligne, échantillon, haute tension). Les fichiers, d'une taille maximale de 2 GB, sont alors envoyés avec un débit de 15 MBytes/s (câbles Gb ethernet) vers un parc de disques en salle de contrôle, les données réduites sont observables en ligne via le programme de visualisation "Event display". Une fois fermés, ces fichiers (\*.raw[122]) sont envoyés (Gb ethernet) vers le système de stockage du CERN : CASTOR (Cern Advanced

<sup>1</sup>Cette limite en temps correspond à la limite minimale en énergie de 0,7 eV.

STORage manager), puis migrés sur bandes [123]. La copie de ces données peut alors être traitée par un algorithme d'analyse de forme des signaux adapté à chaque détecteur, qui s'exécute en batch (par lots et à distance) grâce au service du CERN Lxbatch [124]. Les paramètres extraits de ce traitement sont enregistrés dans des fichiers (\*.dst) sur bandes : sous format DST (Data Summary Tape), ce qui réduit également les données [125].

Il n'y a pas de temps mort, car ce système permet d'enregistrer les données pendant les 16 ms de déversement de neutrons, puis d'effectuer le stockage entre deux bursts. Un minimum de 2,4 s entre deux bursts de neutrons est nécessaire au bon déroulement de ces processus. Cependant, si la quantité de données risque de saturer le transfert et d'entraîner la perte de blocs, les seuils doivent être augmentés. C'est ce qui a dû être fait sur les voies PPACs, notamment avec les cibles très radioactives présentes en 2003.

### • Configuration de l'acquisition pour les PPACs

Pour les PPACs, chaque préamplificateur est associé à un canal : en conditions normales, un PPAC nécessite donc 5 voies, le dispositif complet de 10 détecteurs en nécessite donc 50.

On distinguera les différents détecteurs par leur numéro d'ordre le long du faisceau (de 0 à 9), puis les 4 voies de cathode PPAC X gauche, X droite, Y bas et Y haut et les anodes par des numéros qui les identifient.

Lors du réglage de la configuration de l'acquisition, on choisira pour les PPACs un échantillonnage à 500 MHz (un échantillon toutes les 2 ns) une gamme de  $\pm 0,5$  V sur 8 bits, sur laquelle un signal négatif sera échantillonné (limite inférieure :  $\approx -480$  mV). L'acquisition des signaux peut se faire sur 16 ms dans une mémoire de 8 MB (voir plus haut tableau 5.1).

Pour la suppression de zéro, le seuil doit être ajusté pour chaque canal, car les tensions appliquées à chaque détecteur sont différentes, les formes des signaux entre anode et cathode sont différentes, les positions des lignes de bases diffèrent également, et enfin selon la radioactivité de la cible, on cherchera ou non à limiter le taux d' $\alpha$  détectés. C'est pourquoi des runs de tests sont nécessaires pour ajuster la configuration.

Les canaux d'un même module sont synchronisés par une horloge individuelle, en revanche, il y a des horloges indépendantes pour des modules différents<sup>2</sup>. Ceci produit un décalage qui n'est pas constant, mais dépend linéairement du temps, et peut atteindre quelques ns. Une calibration précise des différents modules est donc nécessaire, puisque notre analyse se fonde sur une comparaison entre canaux (entre les deux extrémités d'une ligne à retard ou entre anodes) avec une précision inférieure à la nanoseconde. En outre, on s'attachera, autant que possible, à placer les signaux à comparer sur les voies d'un même module : les anodes le plus regroupées

<sup>2</sup>nous revenons sur ce point dans le chapitre suivant, dans lequel la calibration des modules est décrite.

possible, et les cathodes d'un même détecteur ensemble.

#### 5.1.4 Le contrôle des paramètres

Avant chaque demande de faisceau une procédure précise est suivie, en collaboration avec la salle de contrôle du PS (alignement, vide, vannes, aimant, sécurité...). Avant le lancement d'une mesure (run), les paramètres associés au faisceau (température de cible de spallation, intensité du faisceau de protons, structure d'un cycle, vides dans la ligne), ainsi que les paramètres associés aux détecteurs (pression et débit de gaz, haute tension) doivent être contrôlés, éventuellement modifiés et enregistrés. La nature de l'impulsion de protons et le nombre de protons qu'elle contient sont enregistrés dans des fichiers spéciaux gérés par le système d'acquisition : les fichiers INDEX. Les autres paramètres sont enregistrés et accessibles hors ligne, mais ils ne sont pas intégrés automatiquement dans le système.

L'acquisition est lancée manuellement depuis la salle de contrôle et peut être arrêtée à tout moment manuellement.

Le système d'affichage (EventDisplay) en ligne des données brutes issues directement des modules d'acquisition permet de contrôler le comportement des signaux extraits des détecteurs, moyen d'ajustement de certaines valeurs, et moyen de contrôle du bon déroulement des mesures également. Seule la partie récente des mesures reste accessible à l'analyse en ligne.

## 5.2 Les différentes campagnes de mesures

### 5.2.1 Campagne 2001 : caractérisation de l'installation et comportement des détecteurs

Nous avons vu dans le chapitre 3 les résultats essentiels liés à la caractérisation expérimentale de l'installation n\_TOF durant la période dite de "commissioning" en avril 2001. Dès cette campagne, des détecteurs développés par les différentes équipes ont pu être installés sous faisceau, répondant ainsi à plusieurs objectifs complémentaires : caractériser le détecteur lui-même et son comportement sous le faisceau de n\_TOF, et apporter des précisions, ou des résultats complémentaire concernant le faisceau de neutrons. Nous avons vu que la plupart des résultats de simulation concernant l'installation avaient été confirmés par les premières mesures (flux de neutrons avec faisceau collimaté avec 1,8 cm de diamètre en mode capture) [87], à l'exception du bruit de fond, qui, grâce à des études de simulation complémentaires, et une campagne dédiée (septembre - octobre 2001), a pu être amélioré d'un facteur 30 [100].

Nous décrivons ici les expériences basées sur la détection de produits de fission en coïncidence sur 3 cibles de référence par les 5 premiers PPACs. Leur comportement a ainsi été testé au cours

des premiers mois d'utilisation du faisceau (Mai - Juin 2001) réglé en mode capture (1,8 cm de diamètre de collimateur BSC), avec des cibles de référence ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{209}\text{Bi}$ ).

Sur ces premières mesures ont été testées les méthodes d'extraction des données, puis un programme d'analyse préliminaire a permis d'apporter une mesure du flux de neutrons [126, 87].

Les cibles d' $^{238}\text{U}$  et  $^{235}\text{U}$  utilisées se présentent sous forme d'un dépôt (implanté, voir le paragraphe 4.5.3) d'environ  $100 \mu\text{g.cm}^{-2}$ , avec un diamètre de 1,5 cm. La cible de  $^{209}\text{Bi}$ , dépôt de  $300 \mu\text{g.cm}^{-2}$ , a un diamètre de 12 cm (surface supérieure à  $10 \text{ cm}^2$ ) et intercepte ainsi tout le faisceau, ce qui permet de faire des mesures intégrées.

Après les mesures de bruit de fond et l'amélioration considérable de celui-ci (voir paragraphe 3.5.3) par différentes protections supplémentaires sur la ligne, les mesures ont pu commencer.

### 5.2.2 Campagne 2002

Les mesures de nouveaux actinides commencent en octobre 2002, avec le  $^{232}\text{Th}$  et l' $^{234}\text{U}$  en mode fission (faisceau de 8 cm de diamètre).

Une nouvelle chambre, très similaire à la première, et dont les caractéristiques satisfont parfaitement aux normes de sécurité, est utilisée et l'ancienne est recyclée comme réservoir de radon, lié à la désintégration de l' $^{232}\text{U}$ .

Le nombre de canaux disponibles à cette date ne permet pas de connecter les 50 voies nécessaires à un montage comportant 5 pré-amplificateurs chacun. Aussi, a-t-on utilisé un module de fin de ligne, pour remplacer le deuxième pré-ampli des cathodes : la méthode par différence de temps peut s'utiliser, mais sur une seule voie, en utilisant le rebond sur le module. On utilise de l'isobutane à une pression de 7 mbar.

Toutes les cibles étaient de diamètre 8 cm et d'épaisseur de dépôt d'environ  $300 \mu\text{g.cm}^{-2}$ . Les cibles  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ , plus 4 cibles de  $^{232}\text{Th}$  [cibles 1 à 4] et 3 cibles d' $^{234}\text{U}$  [cibles 1 à 3] ont été mesurées lors de cette campagne [127, 78].

La disposition des cibles et des détecteurs, avec leur identification et les conventions utilisées sous faisceau sont synthétisées pour les campagnes 2002 et 2003 dans le tableau 5.2.

Les manipulations sont rendues extrêmement délicates par la présence d'une impureté d' $^{232}\text{U}$  dans les cibles d' $^{234}\text{U}$ , qui, nous l'avons dit, engendre des émanations de radon. Les modules d'acquisition présentent un décalage en temps, qui doit être calibré à l'aide d'un générateur d'impulsion.

### 5.2.3 Campagne 2003

Au cours de cette campagne entre octobre et novembre 2003 ont pu être mesurés dans des conditions améliorées  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$  et  $^{233}\text{U}$ , avec des diamètres de 8 cm et approxima-

tivement  $300 \mu\text{g.cm}^{-2}$ . Trois périodes de mesures se distinguent. Lors des 2 dernières, ont été additionnées les cibles de Pb naturel et de  $^{209}\text{Bi}$ . Pour des raisons de sécurité, l'ensemble du matériel périphérique nécessaire aux mesures, a dû être placé en dehors de la salle expérimentale. En plus d'être ininflammable, le  $\text{C}_3\text{F}_8$  utilisé pour cette campagne offre des conditions de travail plus stables, moins de "flashes". Le nombre de canaux disponibles a permis de connecter les 50 voies nécessaires à un montage comportant 5 pré-amplificateurs chacun.

Les 3 périodes de mesures sont :

- Période 1 :  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ , 5 cibles de  $^{232}\text{Th}$ , 2  $^{234}\text{U}$ . (3 semaines, runs 4846 à 4964)
- Période 2 :  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ , Pb naturel,  $^{209}\text{Bi}$ ,  $4 \times ^{237}\text{Np}$ . (2 semaines, runs 4984 à 5071)
- Période 3 :  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ , Pb naturel,  $^{209}\text{Bi}$ ,  $4 \times ^{237}\text{Np}$ ,  $^{233}\text{U}$ . (1,5 semaines, runs 5108 à 5200)

Le tableau 5.2 donne la place relative des détecteurs et des cibles pour les 3 périodes de la campagne.

Nous avons choisi de consacrer nos efforts dans cette thèse sur la description de l'analyse des données collectées lors de la campagne 2003 des mesures de fission avec les PPACs. Aussi allons-nous présenter dans les chapitres suivants la méthode d'analyse associée au dispositif de cette période.

## 5.3 Traitement des données

Les données dont l'analyse est décrite ci-après sont celles collectées lors des mesures effectuées durant la campagne 2003. Parmi les runs 4846 à 5203 ont été exploités ceux ne présentant pas d'anomalies.

### 5.3.1 Forme des données

#### • Vocabulaire

Dans un run, chaque paquet de faisceau représente un événement, dont la place dans le run est marquée par un numéro. L'événement est caractérisé par ce numéro, sa date, le nombre de protons reçu. Les signaux ne dépassant pas un seuil prédéfini sont éliminés grâce au processus de suppression de zéro : si la valeur du signal collecté dépasse un certain seuil défini par l'utilisateur sur le système d'acquisition, l'enregistrement du signal s'effectue sur un intervalle de temps comportant l'intervalle de pré-impulsion ( $2 \mu\text{s}$ ), la durée du signal et celui de post-impulsion ( $2 \mu\text{s}$ ). Un événement comporte donc plusieurs fenêtres en temps d'une durée supérieure à  $4 \mu\text{s}$ , contenant un ou plusieurs signaux.

L'estimation des taux de comptage a permis d'évaluer le nombre de signaux attendus dans une fenêtre de 16 ms : il dépend du taux de réaction, fission et autres réactions, de chaque

Année	2002	2003	2003	2003
Période		Période 1	Période 2	Période 3
↓neutrons↓	↓neutrons↓	↓neutrons↓	↓neutrons↓	↓neutrons↓
Det 9	10	1	1	1
Cible 8	$^{238}\text{U}$ cible unique	$^{238}\text{U}$ cible unique	$^{238}\text{U}$ cible unique	$^{238}\text{U}$ cible unique
Det 8	8	2	2	2
Cible 7	$^{235}\text{U}$ cible unique	$^{235}\text{U}$ cible unique	$^{235}\text{U}$ cible unique	$^{235}\text{U}$ cible unique
Det 7	9	3	3	3
Cible 6	$^{232}\text{Th}$ cible 1	$^{232}\text{Th}$ cible 1	$^{nat}\text{Pb}$ cible unique ( $\varnothing$ 10 cm)	$^{nat}\text{Pb}$ cible unique ( $\varnothing$ 10 cm)
Det 6	6	4	4	4
Cible 5	$^{232}\text{Th}$ cible 2	$^{232}\text{Th}$ cible 2	$^{209}\text{Bi}$ cible unique ( $\varnothing$ 10 cm)	$^{209}\text{Bi}$ cible unique ( $\varnothing$ 10 cm)
Det 5	1	5	5	5
Cible 4	$^{232}\text{Th}$ cible 3	$^{232}\text{Th}$ cible 3	$^{237}\text{Np}$ cible 8	$^{237}\text{Np}$ cible 8
Det 4	2	6	6	6
Cible 3	$^{232}\text{Th}$ cible 4	$^{232}\text{Th}$ cible 4	$^{237}\text{Np}$ cible 7	$^{237}\text{Np}$ cible 7
Det 3	5	7	7	7
Cible 2	$^{234}\text{U}$ cible 3	$^{232}\text{Th}$ cible nou- veau cadre	$^{237}\text{Np}$ cible 6	$^{237}\text{Np}$ cible 6
Det 2	7	8	8	8
Cible 1	$^{234}\text{U}$ cible 2	$^{234}\text{U}$ cible 3	$^{237}\text{Np}$ cible 1	$^{237}\text{Np}$ cible 1
Det 1	12	9	9	9
Cible 0	$^{234}\text{U}$ cible 1	$^{234}\text{U}$ cible 2	$\varnothing$	$^{233}\text{U}$ cible unique
Det 0	11	10	10	10

TAB. 5.2 – Tableau récapitulatif des positions relatives des détecteurs et des cibles, avec leur identification utilisée dans l’acquisition et dans l’analyse en correspondance avec leur identification de fabrication. Toutes les cibles font 8 cm de diamètre, exceptées celles de  $^{209}\text{Bi}$  et de  $^{nat}\text{Pb}$ , qui ont un diamètre de 10 cm.

cible, mais aussi de sa radioactivité  $\alpha$  spécifique. Ainsi, le calcul approximatif décrit dans le paragraphe 4.6.3 aboutit à une vingtaine de fissions ayant lieu dans une cible pendant 16 ms. De plus, pour les cibles les plus radioactives ( $^{233}\text{U}$  ou  $^{234}\text{U}$ ), on peut s'attendre à presque 5 émissions de particule  $\alpha$  par microseconde (se reporter au tableau 4.3 donnant l'activité totale des cibles), et plus rarement dans les autres cibles. Un événement provoquera, sur toutes les voies et pendant 16 ms, l'enregistrement d'une quantité de données de quelques dizaines de kBytes selon le détecteur. La taille des fichiers de données brutes est limitée : en effet, pour faciliter les capacités d'accès ultérieur et limiter les pertes de données en cas de dysfonctionnement de l'acquisition, une segmentation automatique s'opère quand un run est long en l'absence de problème inhérent au faisceau, ou de nécessité d'intervenir sur les montages expérimentaux ou les programmes périphériques. Ainsi, quand la quantité de données dépasse 1,8 GBytes dans un des fichiers enregistrant les données dans les différents boîtiers, un nouveau segment est ouvert. Le segment est donc une sous partie d'un run long il comporte quelques milliers de bursts de protons.

#### • Données brutes et forme des signaux

Les données brutes forment une succession d'octets représentant, toutes les 2 ns, la valeur du signal collecté dans une gamme dynamique de  $\pm 0,5$  V répartis sur 256 canaux. Comme nous l'avons mentionné lors de la description des résultats des tests de chaque détecteur, les signaux sont négatifs, ceux des anodes comportent une partie rapide dont la largeur à mi-hauteur est de 9 ns, celles des signaux de cathodes de 36 ns (voir figure 5.3). Puis une traînée d'une microseconde forme la seconde partie du signal et est attribuée à la contribution des ions positifs migrant après l'ionisation du gaz. Le temps correspondant est donné, à un retard près, par rapport au temps donné par le système de déclenchement.

#### • Extraction des paramètres des signaux

Doivent alors être extraits avec précision les paramètres pertinents suivants :

- le temps
- l'amplitude

La méthode qui consiste à obtenir le temps correspondant au dépassement d'un seuil n'est pas assez précise : elle dépend de l'amplitude du signal, et souffre d'éventuelles erreurs en cas de fluctuations du signal autour de sa forme théorique, notamment si un signal est observé (comme le signal d'abscisse 500 u.a. noyé dans la longue traînée du signal d'anode en noir en haut sur la figure 5.4) superposé à une ligne de base décalée par rapport au zéro. Il peut en outre arriver qu'une avalanche permanente soit déclenchée dans un détecteur, provoquant ainsi un bruit de



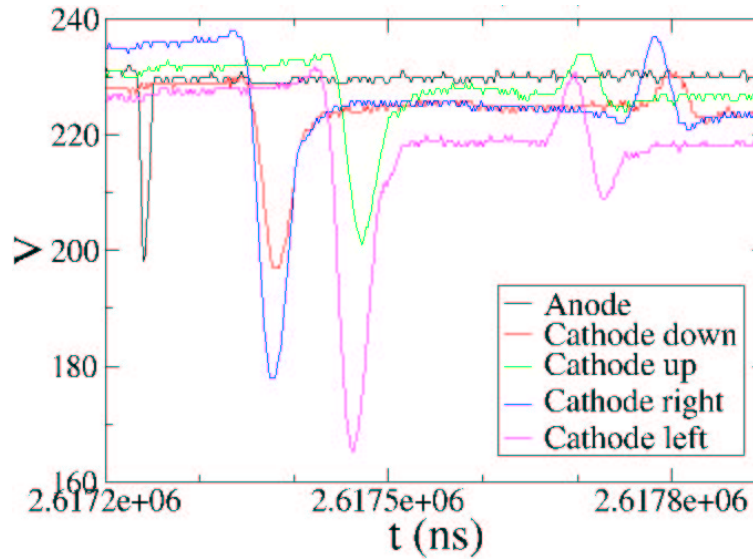


FIG. 5.3 – Représentation des signaux associés à un événement de fission sur un des détecteurs accolés à la cible d' $^{235}\text{U}$ . On peut observer la faible largeur du signal d'anode procurant un signal de temps précis, et les signaux de cathodes associées, avec le rebond observé.

fréquence très rapide.

Une méthode beaucoup plus précise et fiable est utilisée [128] : en éliminant le niveau continu pris par la ligne de base subissant des variations lentes, et en lissant les fluctuations rapides autour du niveau continu, cette méthode permet de distinguer les pics d'événements intéressants caractérisés par des temps de descente et de montée très courts. Elle permet de déterminer les temps correspondant au passage par le minimum de ces signaux en dixièmes de nanosecondes.

Cette méthode consiste à appliquer par convolution un filtre à la dérivée du signal. Les paramètres du filtre passe-bas sont adaptés aux paramètres du signal, de manière à favoriser sa composante piquée. Le résultat de ce traitement est un signal bipolaire, dont la précision est supérieure à celle du signal initial. L'amplitude crête à crête du signal bipolaire est égale, par construction, à l'amplitude du signal initial.

Sur la figure 5.4, sont représentés, pour une anode et une cathode associées, les signaux tels qu'ils sont enregistrés par le système d'acquisition et le résultat du processus d'extraction. On observe sur cette figure que sur une ligne de base sans variation, dont les fluctuations ayant une fréquence trop rapide sont lissées, se détachent des pics correspondant à la composante rapide des signaux à analyser.

Pour être sûr qu'un signal bipolaire obtenu correspond bien à un signal, et non à une déformation quelconque (rebonds, pics contigus...), on s'assure que le signal bipolaire a une forme

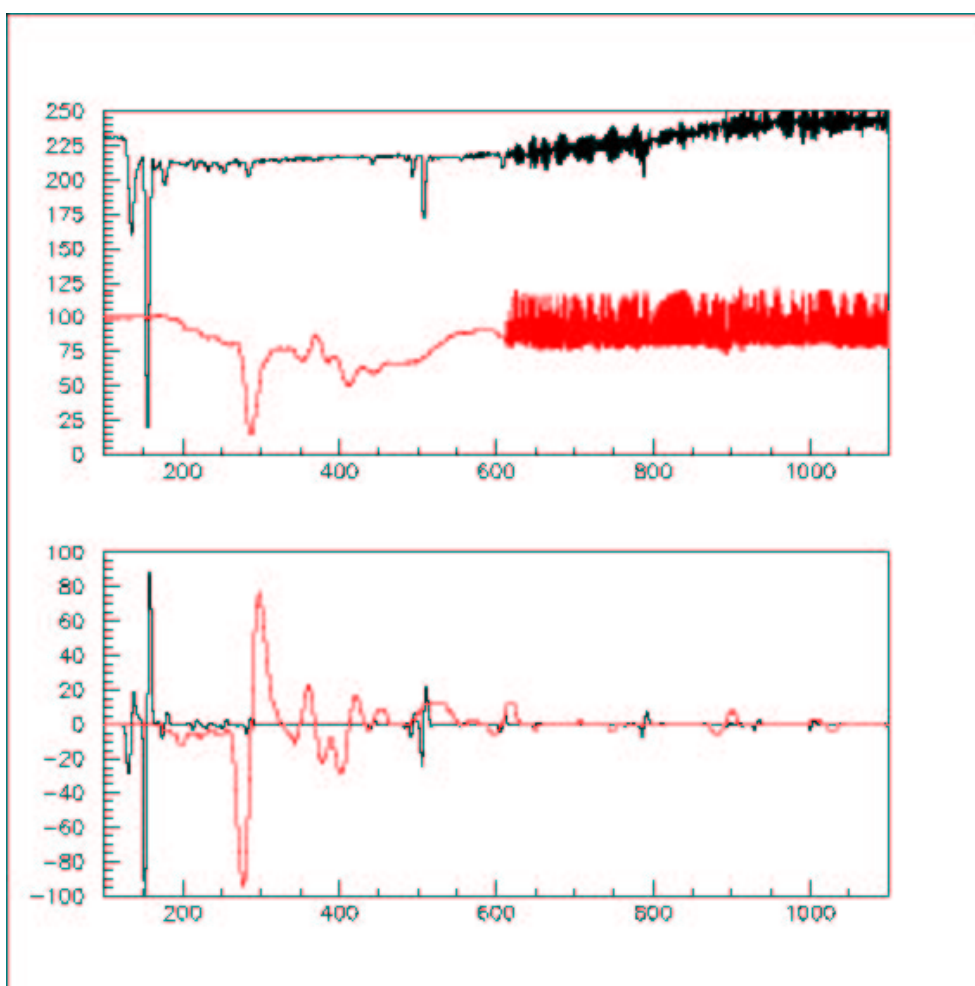


FIG. 5.4 – Représentation graphique, en haut, de signaux bruités d'anode (en noir) et de cathode (en rouge). En bas : résultat de la convolution des signaux. Les pics sont bien distincts de la ligne de base à zéro. On observe le lissage du bruit haute fréquence, et l'extraction des signaux de cette zone.

symétrique : un seuil symétrique doit être dépassé du côté négatif puis du côté positif, on impose des conditions sur la distance entre les 2 sommets (ne doit pas dépasser 1,5 fois la largeur attendue du pic), et le rapport des amplitudes (compris entre 0,3 et 3).

On détermine ensuite l'instant associé au signal extrait. Cet instant, où le signal négatif atteint le minimum, correspond à l'instant où le signal bipolaire s'annule, il détermine l'instant d'arrivée de la particule détectée par rapport au déclenchement.

La routine qui effectue ce traitement sur les données brutes permet de générer des fichiers de contrôle, et les fichiers regroupant les données pertinentes (\*.dst). Ces fichiers ont la même structure et les mêmes informations que ceux issus de l'acquisition, mais on y a remplacé les séquences de signaux échantillonnés par la liste des pics qui y ont été trouvés, munis de leur position en temps et de leur amplitude. Ceci conduit à une réduction importante du volume de données à traiter.

Les données contenues dans ces fichiers prêts à être analysés ne sont pas corrigées du décalage en temps entre modules de Flash-ADC.

### 5.3.2 Etalonnage des modules d'acquisition

#### • Décalage entre modules dus aux horloges

Nous avons abordé le problème du décalage en temps entre les modules d'acquisition (paragraphe 5.1.3 du chapitre précédent) : c'est pour cela que nous avons placé, dans la mesure du possible, les voies que nous voulons comparer à l'analyse (les anodes entre elles, les cathodes d'un même détecteur) sur un même module. Mais les modules comportent entre 2 et 4 voies d'acquisition, aussi ne peut-on pas associer les 10 anodes correspondant au dispositif complet. Une calibration précise est donc nécessaire. Les quartz implantés dans chaque module d'acquisition ont une fréquence d'oscillation permettant d'obtenir une mesure de temps précise. Bien que la précision sur la période d'oscillation soit de l'ordre de  $10^{-6}$ , la dispersion entre modules différents peut engendrer un décalage en temps d'autant plus important que le temps est grand. Ainsi aux temps de l'ordre de 16 ns la déviation peut atteindre 16 ns.

Ce décalage est incompatible avec notre précision en temps. Nous avons vérifié que le décalage en temps est linéaire avec le temps : fraction de ns aux temps très courts, il peut atteindre plusieurs ns aux temps approchant les 16 ns.

#### • Méthode d'étalonnage

La calibration se fait avec un générateur d'impulsion produisant de manière identique sur 2 voies des trains d'impulsions avec une période 80  $\mu s$ , une largeur de 20 ns et une amplitude

négative de -200 mV. Un signal est utilisé comme référence sur une voie d'un module de référence. Le deuxième signal est envoyé sur la voie à calibrer, et l'opération répétée pour chaque voie. Le temps est extrait au passage d'un seuil de -100 mV. Les paramètres de la régression linéaire en fonction du temps sont extraits à partir de plusieurs points et utilisés pour corriger les données.

### 5.3.3 Structure générale de l'analyse

La stratégie globale de l'analyse pour une cible se résume à l'identification en temps des événements de fission, caractérisés par l'émission en coïncidence de deux PF, la détermination de l'angle d'émission des PF par rapport à la normale à la cible, et de la localisation sur la cible du noyau fissionnant. Mais il faut rappeler que notre dispositif est composé de 9 cibles et de 10 détecteurs alternés, et qu'un fragment de fission peut traverser 2 détecteurs. Aussi on ne peut se concentrer sur une seule cible sans prendre en compte les autres cibles.

Rappelons tout d'abord que le signal d'anode fournit l'information temps, et que les signaux de cathodes fournissent l'information position.

Les deux détecteurs encadrant une cible dans laquelle a eu lieu une fission sont touchés par un produit de fission, mais un fragment peut traverser 2 voire 3 détecteurs : la première étape va consister à déterminer la cible d'émission des fragments. Cette recherche de signaux en coïncidence s'effectue sur les signaux d'ANODE exclusivement.

Ensuite, on déterminera la position de passage des produits de fission sur les détecteurs entourant la cible identifiée. Pour la localisation de ces particules, et de leur noyau d'origine, on exploitera les signaux des CATHODES.

### 5.3.4 Les outils et méthodes utilisés

Les fichiers de données sont enregistrés sur le système de stockage CASTOR du CERN. Le langage C ou C++ a été utilisé pour construire les programmes permettant de traiter les données à distance grâce au système batch du CERN [124], ou en local. L'analyse du système de données organisé (ntuple ou trees) a été menée à bien en utilisant les logiciels d'analyse ROOT [129] ou le logiciel d'analyse multidimensionnelle développé à Orsay.

## 5.4 Analyse

### 5.4.1 Nombre de protons d'un événement

La valeur du nombre de protons dans un paquet permet d'identifier une anomalie. En effet, en général, un paquet distribué en mode parasite contient un peu moins de  $4 \cdot 10^{12}$  protons,

tandis qu'un paquet distribué en mode dédié en contient près du double :  $7 \cdot 10^{12}$ . Si le nombre de protons enregistré sur bande (fichiers INDEX) est très différent de ces ordres de grandeur, les données de l'événement sont rejetées et non traitées : le nombre de protons n'est pas fiable. Dans le but de garder une corrélation entre données et nombre de protons, nous choisissons d'éliminer les événements dont le nombre de protons n'a pas été lu correctement. En effet, le nombre de protons est nécessaire à la normalisation du taux de réaction pour obtenir le flux de neutrons de l'installation, exprimé pratiquement par paquets de  $7 \cdot 10^{12}$ . Pour chaque événement, si le nombre de protons de l'événement est plausible, on enregistre son numéro, sa date, son temps d'arrivée et la valeur du nombre de protons.

#### 5.4.2 Recherche du gamma-flash : la référence en temps

A chaque événement-faisceau, tous les détecteurs sont touchés par l'intense flot de particules se propageant à la vitesse de la lumière appelé gamma-flash et dont nous avons discuté dans le paragraphe 3.5.2 du chapitre 3. Ce flash est composé de particules  $\gamma$ , auxquelles les PPACs sont insensibles, mais aussi, de particules chargées de haute énergie (protons et muons), que les PPACs pourront détecter.

On représente un exemple de signal intense produit par seulement deux détecteurs sur la figure

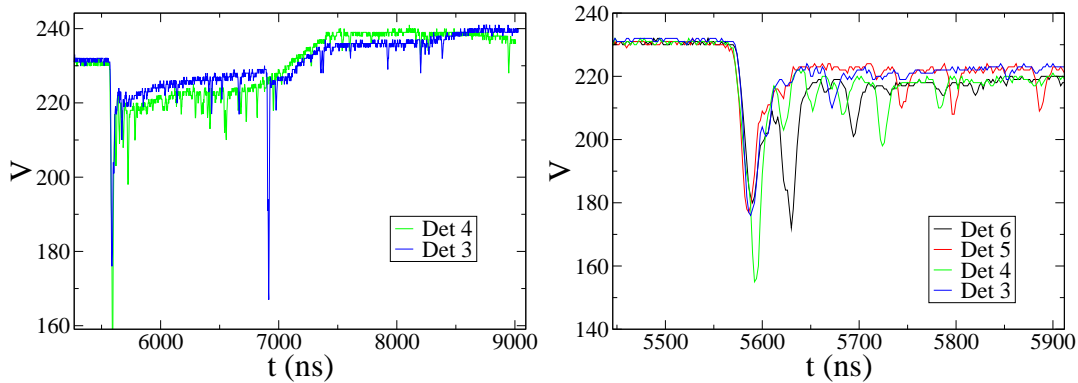


FIG. 5.5 – Exemple de signal provoqué par le gamma-flash sur 2 détecteurs, à gauche. Et sur 4 détecteurs, à droite. Le signal vert montre un cas d'empilement de signal avec un gamma-flash.

En déterminant précisément le temps d'arrivée de ce signal de référence,  $t_{mes/PS}(\text{gamma} - \text{flash})$ , on pourra alors déterminer la différence en temps entre un signal  $t_{mes/PS}(\text{signal})$  et le gamma-flash, qui lui n'est presque pas soumis à la modération :

$$\Delta t = t_{mes/PS}(\text{signal}) - t_{mes/PS}(\text{gammaflash}) \quad (5.1)$$

et on aura :

$$t_{reel}(signal) = t_{reel}(gammaflash) + \Delta t \quad (5.2)$$

Pour les 184 mètres qui séparent le dispositif des PPACs de la cible de plomb, le temps nécessaire  $t_{reel}(gamma - flash)$  à ces particules pour se propager est d'environ 615 ns. Ainsi, 615 ns après le déclenchement de l'acquisition par l'impact des protons sur la cible, un signal intense coïncidant entre toutes les anodes des détecteurs peut être exploité comme référence. Aucune localisation n'est visible : il s'agit d'un flux homogène de particules qui parvient sur toute la surface du détecteur. Cet événement n'est pas nécessairement le premier événement vu par un détecteur, même s'il correspond au premier événement associé au faisceau. Des particules  $\alpha$  dues à la radioactivité des cibles peuvent être détectées auparavant. Tous les détecteurs sont soumis à ce phénomène, mais il arrive parfois qu'une (8% des cas) ou deux voies ne présentent pas ce signal. On attribue ces pertes à des empilements de fission sur le gamma-flash, qui n'est alors pas extrait, ou aux décalages en temps du module d'acquisition (voir paragraphe suivant). Dans la plupart des cas, les 10 voies enregistrent un signal correspondant au gamma-flash, c'est à dire un signal intense, dont le temps d'arrivée est confiné dans une fenêtre étroite en temps. Si au moins 7 détecteurs présentent un signal dans la première microseconde de la fenêtre d'acquisition de 16 ms, alors l'événement est considéré comme le gamma-flash, et la moyenne des instants correspondant aux différentes impulsions est utilisée comme référence.

### 5.4.3 Correction du décalage en temps aléatoire de toutes les voies

En plus du problème de décalage linéaire, un décalage des modules, aléatoire, mais de valeur définie, a été identifié : pour un certain nombre d'événements (jusqu'à 5 %), dont les caractéristiques ne sont pas particulières, l'ensemble des données est décalé de 10 ou 20 nanosecondes. Ces événements doivent être identifiés, et les temps enregistrés corrigés du retard correspondant. En se basant sur le décalage du gamma-flash identifié préalablement, et dont l'instant d'arrivée est normalement contenu dans une fenêtre en temps, centrée autour d'une valeur identique quel que soit l'événement, on peut déterminer un événement touché par ce décalage et en corriger presque tous les signaux. La méthode n'est pas systématique, mais elle permet au cas par cas de corriger un maximum d'événements décalés sans générer de décalage sur des événements qui ne l'étaient pas.

### 5.4.4 Détermination des fenêtres de coïncidence entre anodes adjacentes

La détermination des fenêtres de coïncidence consiste à noter les limites de la distribution des différences en temps entre deux détecteurs adjacents. Pour un instant  $t_{ai}$  du signal collecté par l'anode du détecteur  $i$ , on cherche les impulsions  $t_{a(i+1)}$  du détecteur adjacent  $i+1$  contenue

dans une fenêtre large  $[-25 \text{ ns}; +25 \text{ ns}]$  autour de  $t_{ai}$ , fenêtre bien supérieure aux quelques ns devant séparer 2 PF. Si  $t_{a(i+1)}$  existe, on enregistre la valeur de  $t_{a(i+1)} - t_{ai}$  pour  $i$  variant sur le nombre de couples de détecteurs. La procédure est réitérée pour tous les signaux d'anode, dans la fenêtre de 16 ms d'acquisition, et la distribution des différences de temps entre détecteurs adjacents  $t_{a(i+1)} - t_{ai}$  est représentée.

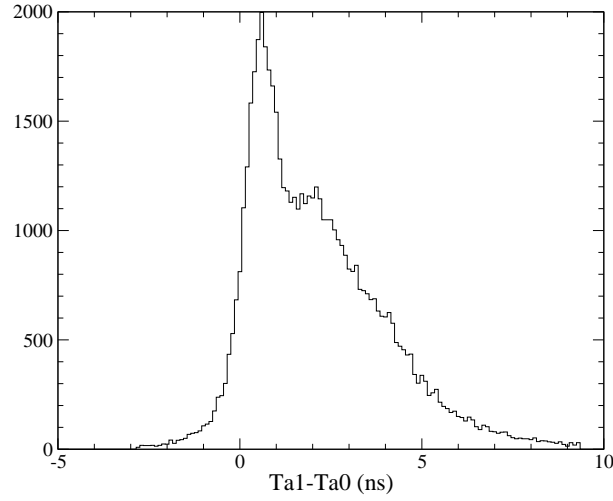


FIG. 5.6 – Exemple de distribution de la différence entre les temps d'anode du détecteur 1 et les temps d'anode du détecteur 0 : ta1-ta0.

Cette distribution représentée sur la figure 5.6 est piquée autour de zéro, ou d'une valeur décalée si un retard est introduit par l'électronique (câbles de connexion). Elle présente une déformation due à l'asymétrie de masse de la fission et à la présence du support de cible. Les bornes de cette distribution fournissent les limites des fenêtres entre lesquelles rechercher les signaux dits en coïncidence.

#### 5.4.5 Recherche des différentes configurations de coïncidences entre détecteurs

Nous allons définir ce que nous avons appelé le *type de coïncidence*. Le type de coïncidence permet d'effectuer un tri parmi les différentes configurations de détecteurs touchés simultanément, et ainsi de segmenter l'analyse. Les coïncidences multiples ne sont pas réservées aux signaux du gamma-flash. Selon son angle d'émission et sa masse, un noyau peut traverser plus d'un détecteur. Comme l'illustre la figure 5.7, où sont représentés trois cas de figure, ou types de coïncidence, un nombre de détecteurs supérieur à 2 peut être touché lors d'un événement de fission.

En effet, on calcule qu'un produit de fission d'énergie maximale de 100 MeV, se propageant perpendiculairement après avoir été émis à partir de la face extérieure d'une cible est détectable dans le détecteur adjacent, et encore dans le détecteur suivant, après avoir traversé la cible mitoyenne.

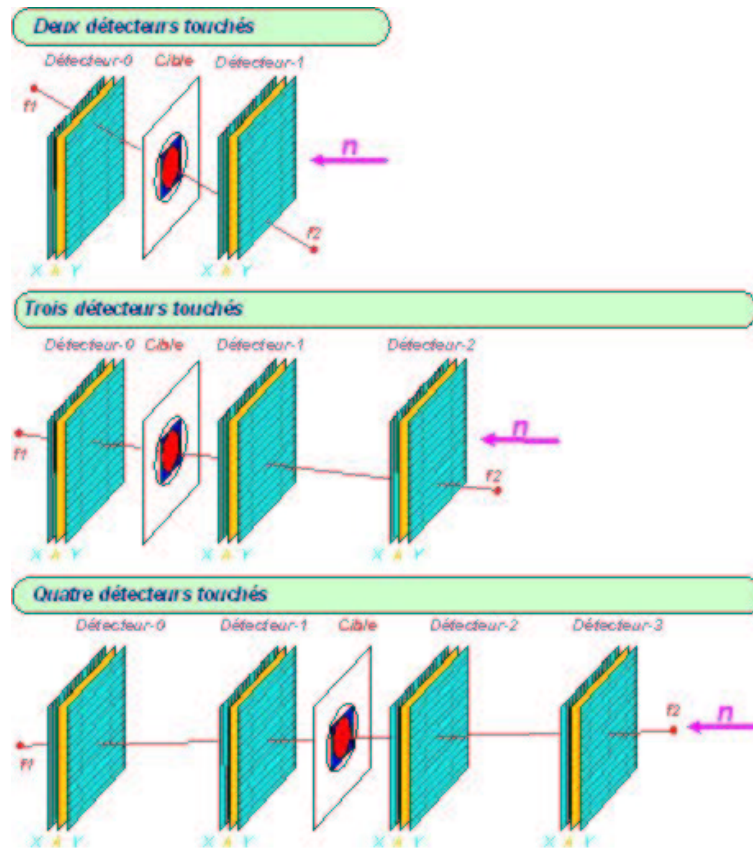


FIG. 5.7 – Revue des 3 situations les plus probables : aux petits angles, les produits de fission peuvent traverser le détecteur le plus près de la cible et être détecté dans le détecteur suivant. Les 2 premières situations correspondent à des coïncidences de type 2 (2 détecteurs touchés) et de type 3 (3 détecteurs touchés) et la dernière à une coïncidence de type 4 [130].

Imaginons maintenant que des événements donnant naissance à des produits détectables (fission, réactions à haute énergie) aient lieu simultanément dans 2 cibles différentes non mitoyennes (séparées par plusieurs autres cibles et détecteurs). Dans ce cas, 2, 3 ou 4 détecteurs peuvent être touchés autour de chacune des 2 cibles : les anodes de 2, 3, jusqu'à 7 détecteurs collecteront alors des signaux coïncidant en temps. D'autres situations peuvent être envisagées : une fission entre 2 détecteurs et une particule  $\alpha$  émise simultanément par une cible adjacente, ou encore, à haute énergie, des produits de recul de réaction sur les matériaux des supports (aluminium,



carbone, oxygène). De proche en proche, chaque détecteur présentera un ou plusieurs signaux en coïncidence avec celui qui le précède, comme l'illustre, sur un exemple, la figure 5.8.

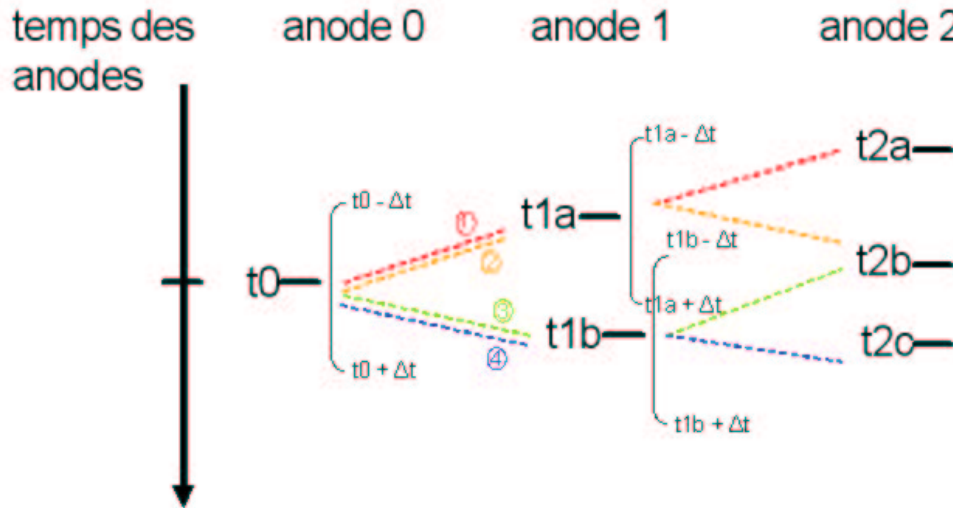


FIG. 5.8 – Exemple de configurations possibles d'anodes associées par ouverture de fenêtres de coïncidence autour des temps d'anodes. A partir de  $t_0$  on ouvre une fenêtre  $[t_0 - \Delta t; t_0 + \Delta t]$ , dans laquelle on cherche les signaux d'anode du détecteur 1 : il y a 2 possibilités,  $t_{1a}$  et  $t_{1b}$ . En continuant la recherche sur les détecteurs suivants, jusqu'à ne plus trouver de signal en coïncidence, on trouve finalement 4 configurations possibles d'anodes, parmi lesquelles on doit extraire celle qui correspond à une fission entre 2 des détecteurs.

Quand toutes les configurations possibles sont déterminées pour le jeu complet de détecteurs, 6 types de coïncidences (types 2 à 7) forment des sous-ensembles de données. Pour une anode, il y a en général, à basse énergie, une seule configuration de détecteurs touchés, mais à haute énergie, à cause du taux de comptage instantané plus élevé, on repérera plusieurs configurations de détecteurs en coïncidence possibles, parmi lesquelles nous devons chercher les événements dont la coïncidence n'est pas fortuite, et correspond donc à une fission possible. Le premier travail sera de déterminer entre quels détecteurs une fission a eu lieu.

#### 5.4.6 Recherche de la configuration la plus probable pour une fission

L'observation systématique des signaux en ligne a permis de conclure que parmi tous les signaux, celui qui a l'amplitude maximale est toujours l'un des 2 signaux signant l'émission d'un produit de fission. Parmi les différentes configurations possibles, on ne retient dans un premier temps que celles qui possèdent le signal de plus grande amplitude parmi tous les signaux possibles

(observer la figure 5.9). Les autres configurations seront examinées plus tard pour vérifier si elles remplissent les critères indiquant qu'il s'agit aussi d'une fission.

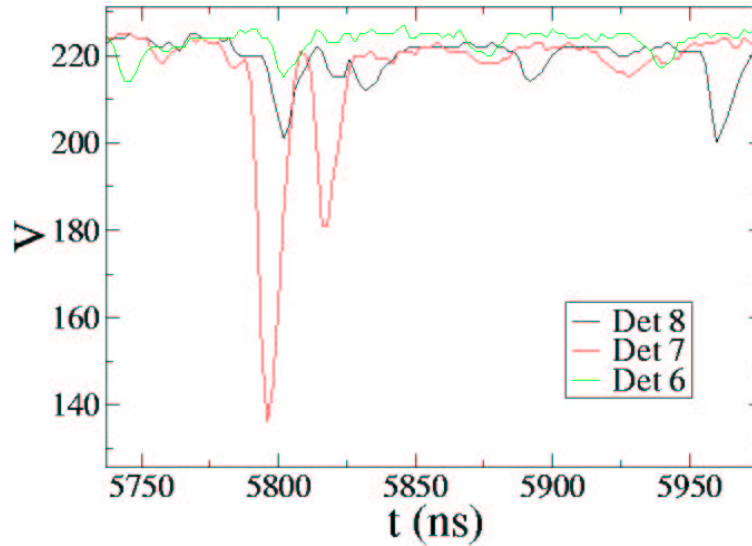


FIG. 5.9 – Signaux d'anode de 3 détecteurs : le pic de grande amplitude dans le détecteur 8 aux alentours de 5800 ns suggère l'existence d'une fission : un PF léger est sorti de la cible vers le détecteur 7 et le noyaux lourd vers le détecteur 8, créant un signal de moindre amplitude. Le signal sur le détecteur 6, de faible amplitude et légèrement retardé correspond à la détection du PF léger ayant traversé le détecteur 7 et la cible entre 7 et 6. La configuration contenant le deuxième signal rouge est rejetée. La situation est représentée sur la figure 5.10 par le parcours vert.

Le signal de plus grande amplitude a été émis en coïncidence avec un signal dans un des détecteurs qui lui sont adjacents. Nous savons qu'il est en coïncidence avec un des signaux du détecteur précédent, puisque c'est ainsi qu'il a été identifié. Nous avons déjà effectué une recherche des signaux en coïncidence dans le détecteur qui le suit. Mais la recherche n'est pas complète : y'a-t-il d'autres signaux en coïncidence dans le détecteur précédent ? Ces signaux sont donc recherchés. Toutes les configurations possibles sont conservées : le numéro du premier détecteur touché, les temps et amplitude de chacun des signaux concernés.

#### 5.4.7 Identification certaine des fissions et de leur cible émettrice

Dans le cas d'une coïncidence de type 2, la configuration obtenue a de fortes chances d'être associée à une fission ayant eu lieu dans la cible entre les 2 détecteurs touchés. Mais cela peut correspondre aussi à un seul produit de fission venant d'une cible d'à côté. Ce peut être également

une coïncidence fortuite entre 2 particules  $\alpha$  émises par les cibles. De même, si 3, ou même 4 détecteurs sont touchés, la fission peut avoir eu lieu dans n'importe quelle cible placée entre les détecteurs. Il faut donc déterminer de façon certaine l'origine de la détection en coïncidence de 2 particules dans 2 détecteurs, de façon à extraire de ces événements les fissions que nous voulons compter. Nous allons utiliser les amplitudes des signaux.

Reprenons sur la figure 5.7 un exemple de configuration possible déterminée entre les détecteurs 0, 1 et 2. C'est une configuration de type 3.

→ Une fission a-t-elle eu lieu entre les détecteurs 0 et 1 ? Dans ce cas, un produit de fission émis vers le détecteur 0 est arrêté, et le deuxième produit de fission émis vers le détecteur 1, détecté par le détecteur 2 après avoir traversé ce dernier et la cible suivante. C'est la première configuration schématisée sur la figure 5.7.

→ Ou bien la fission a-t-elle eu lieu entre les détecteurs 1 et 2 ? Dans ce cas, un produit de fission émis vers le détecteur 2 est arrêté, et le deuxième produit de fission émis vers le détecteur 1, détecté par le détecteur 0 après avoir traversé ce dernier et la cible suivante.

Pour décrire ce problème délicat sur une configuration réelle, reportons-nous à une configuration de la période 2 de l'année 2003 (tableau 5.2) illustrée sur la figure 5.10. Les événements de fission ayant lieu dans la cible de  $^{235}\text{U}$  entre les détecteurs 7 et 8 vont générer des produits de fission, dont une partie sera détectée dans le détecteur 6, entourant la cible de  $^{209}\text{Bi}$  (chemin vert). Les événements ayant lieu dans la cible de  $^{209}\text{Bi}$  sont également détectés par ces deux détecteurs (chemin rouge). Nous devons donc nous affranchir des fausses coïncidences apportées par la proximité des cibles.

La sélection permettant d'identifier la cible émettrice s'appuie sur 2 idées :

1. les signaux ayant traversé plusieurs couches avant d'être détectés ont une amplitude plus faible que les autres. Par exemple, un événement de fission dans l' $^{235}\text{U}$  provoque l'émission d'un PF détecté dans le détecteur 7, puis après traversée de la cible de  $^{209}\text{Bi}$  et de son support, détectée dans le détecteur 6 avec une moindre amplitude.
2. la différence en temps entre les 2 détecteurs encadrant la cible émettrice est centrée autour de zéro, et est plus grande, en valeur absolue, entre les détecteurs associés ne l'encadrant pas. Ainsi, la différence en temps  $t_{A7} - t_{A6}$  est centrée autour de zéro pour les événements ayant lieu dans la cible de  $^{209}\text{Bi}$ , tandis qu'elle est plutôt négative pour les événements ayant eu lieu dans la cible de  $^{235}\text{U}$ , entre les détecteurs suivants<sup>3</sup>.

La sélection se fait en observant l'amplitude des signaux de l'anode d'un détecteur en fonction

---

<sup>3</sup>Il suffit de remarquer que le produit de fission traverse nécessairement le détecteur 7 avant le détecteur 6, s'il est émis entre les détecteurs 7 et 8.

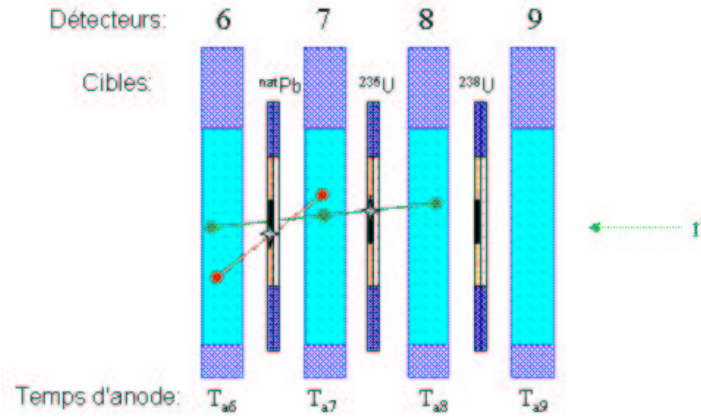


FIG. 5.10 – Zoom sur la première partie du dispositif réel de la période 2 de la campagne 2003 : 4 détecteurs encadrent 3 cibles. Deux cas sont représentés : une fission dans l' $^{235}\text{U}$  donnant lieu à 3 signaux en vert, et une fission dans le  $^{nat}\text{Pb}$  dont les 2 produits donnent lieu à 2 signaux en rouge. Dans tous les cas, les détecteurs entourant le  $^{nat}\text{Pb}$  sont touchés : amplitude et différence de temps vont permettre d'extraire la cible fissionnante.

de la différence de temps entre ce détecteur et celui qui le succède sur un graphe bidimensionnel, c'est à dire, en utilisant les notations déjà utilisées, en représentant pour chaque détecteur  $i$  d'une configuration, l'amplitude du signal d'anode  $a_{Ai}$  en fonctions de la quantité  $\Delta t_i$ , comme sur la figure 5.11.

On remarque très bien sur les 3 figures 5.11, les deux zones correspondant aux descriptions précédentes. Les événements ayant eu lieu entre les 2 détecteurs considérés ont une amplitude plus grande, et une différence de temps autour de zéro. Pour bien comprendre les différentes parties de ces graphes bidimensionnels on se reportera à la représentation de la figure 5.10. Dans la première figure, la zone de faible amplitude et d'abscisse négative, correspond aux événements issus de la cible d' $^{238}\text{U}$ , atteignant les détecteurs entourant l' $^{235}\text{U}$ . Pour s'assurer de l'origine des événements, on sélectionnera juste ceux contenus dans la zone d'amplitudes supérieures et centrée sur zéro. Les cas suivants montrent la puissance de cette méthode : dans le cas où le taux de réaction est très contrasté entre 2 cibles adjacentes, comme c'est le cas entre l' $^{235}\text{U}$  et le  $^{nat}\text{Pb}$ , on distingue très bien, parmi les coïncidences de type 3, les événements de fission ayant lieu dans la cible de  $^{nat}\text{Pb}$  (centré sur zéro, grande amplitude) de ceux issus de la cible voisine d' $^{235}\text{U}$ . Et même dans le cas de coïncidences de type 2, c'est à dire 2 signaux dans les 2 détecteurs entourant le  $^{nat}\text{Pb}$ , on peut extraire la contribution des événements issus de la cible d' $^{235}\text{U}$ , événements

pour lesquels seul un PF a été détecté, l'autre, certainement un lourd, arrêté à grand angle dans le support de cible, n'étant pas détecté dans l'autre détecteur de l' $^{235}\text{U}$ .

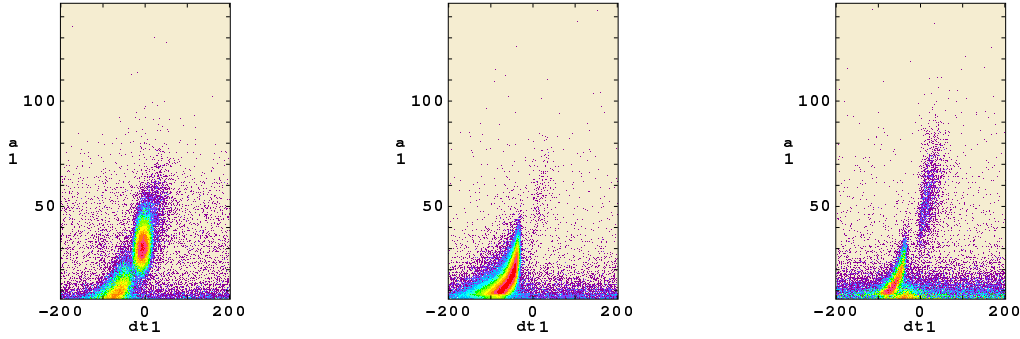


FIG. 5.11 – Représentation pour différentes cibles de l'amplitude  $a_1$  du signal sur un détecteur entourant une cible en fonction de la différence en temps  $dt_1$  entre les signaux des 2 détecteurs l'entourant. À gauche, des coïncidences de type 3 entre les détecteurs 9, 8 et 7 ( $^{238}\text{U}$  et  $^{235}\text{U}$ , voir tableau 5.2 et schéma 5.10), au milieu, entre les détecteurs 8, 7 et 6 ( $^{235}\text{U}$  et  $^{nat}\text{Pb}$ ), et à droite des coïncidences de type 2 entre les détecteurs (6 et 7) entourant le  $^{nat}\text{Pb}$ .

Nous associons maintenant à chacun des signaux d'anode ses signaux de localisation sur le détecteur.

#### 5.4.8 Reconstruction des positions sur les détecteurs avec les cathodes

##### • Principe de la localisation par différence de temps

Le principe de localisation s'appuie sur l'analyse des signaux collectés aux extrémités de la ligne à retard des cathodes. À un signal d'anode donné, sont associés 4 signaux : les 2 signaux d'extrémité de ligne à retard verticale (Y), et les 2 signaux d'extrémité de ligne à retard horizontale (X). La différence de temps  $t_C - t_A$  entre le signal collecté en sortie de pré-amplificateur d'une extrémité  $t_C$  et le signal d'anode  $t_A$  rend compte :

- du temps de la propagation du signal de cathode le long de la ligne à retard, à travers les cellules de retard entre la bande de localisation et l'extrémité de ligne (avec environ 3 ns par cellule)
- du temps de mise en forme du signal dans l'électronique

Seul le premier terme donne lieu à une variation avec la localisation. Ces temps sont représentés sur la figure 5.12, et nous voyons que le temps de propagation le long de la ligne à retard est caractéristique de la position de la bande touchée par le signal sur la cathode.

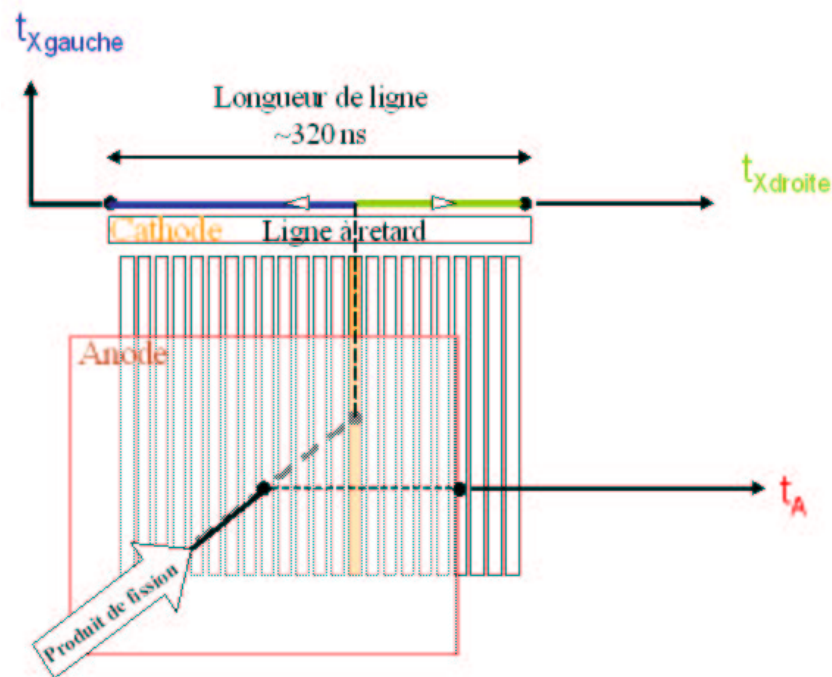


FIG. 5.12 – Schéma explicatif du principe de localisation par différence de temps sur une partie de détecteur : une anode et son temps associé  $t_A$  en rouge, une cathode, les bandes de localisation, la ligne à retard et les temps associés aux 2 extrémités :  $t_{XGauche}$  en bleu et  $t_{XDroite}$  en vert. Est schématisé sur le dessin le point d'impact d'un produit de fission avec ses 3 temps caractéristiques.

Il est possible de voir que la somme du temps de propagation du signal vers une extrémité et du temps de propagation du signal vers l'autre extrémité est une constante, et caractérise la longueur totale  $T_{LR}$  de la ligne à retard :

$$T_{LR} = (t_{Xgauche} - t_A) + (t_{Xdroite} - t_A)$$

Cette durée est proche de 320 ns. Chaque ligne à retard possède donc une longueur en temps correspondant à sa longueur de 21 cm (106 bandes séparées de 100  $\mu m$  avec un pas de 2 mm) .

### • Difficultés de recherche des signaux de cathode associés

Quand un signal d'anode a été sélectionné comme correspondant potentiellement à un événement de fission dans une des cibles de la configuration, on cherche à repérer les signaux de cathode qui sont associés pour les 2 détecteurs qui l'entourent. Si tous les signaux de localisation ne sont pas identifiables, alors la localisation de l'événement est impossible, et l'événement doit être rejeté. Cet événement correspond en général à des trajectoires très inclinées, correspondant à des angles où l'efficacité de détection est réduite, car les amplitudes sont plus faibles.

L'opération d'association de signaux de cathode à une anode n'est pas triviale, en effet, à haute énergie (voir paragraphe 4.6.4), 2 événements de fission peuvent être enregistrés sur un même détecteur et ce, pendant la propagation dans une ligne du premier signal. Il peut y avoir entrelacement des signaux de ligne à retard pour des fissions différentes. La figure 5.13 illustre bien ce problème délicat.

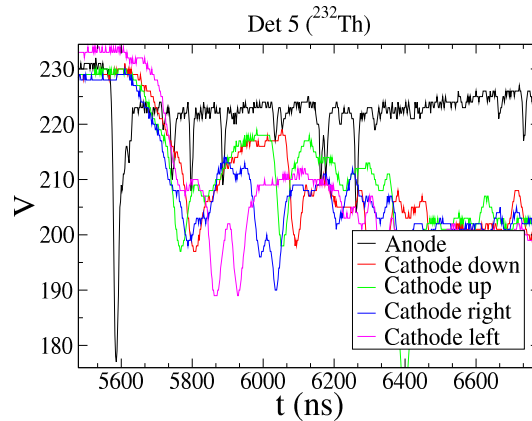


FIG. 5.13 – Le problème épineux de l'association des cathodes aux anodes, dans les domaines en énergie où les fissions sont très fréquentes. On est ici juste après le gamma-flash.

Nous avons déjà fait la remarque que les signaux de cathode sont plus larges, FWHM=36 ns, que les signaux d'anode, FWHM=9 ns. Or, pour des énergies supérieures à 1 MeV, les taux de

fission deviennent plus importants. Au niveau des signaux de cathode, des empilements sont alors observés et, si les conditions d'attribution de cathodes à une anode sont trop sévères, certaines anodes se retrouvent éliminées pour absence de position associée. La fraction d'événements ayant tous leurs signaux est fortement plus faible dans l'intervalle d'énergie au delà de 1 MeV, que dans les intervalles d'énergie plus basse. Les événements sans localisation sont alors perdus. Autrement dit la fraction d'événements perdus est d'autant plus grande que l'énergie est grande. Au delà de 200 MeV, les taux d'empilement peuvent dépasser 10%.

Autrement dit, un signal peut en cacher un autre, il faudra donc en tenir compte.

La recherche des signaux de localisation associés à une anode s'appuie donc sur les corrélations entre signaux d'anode et de cathode, dont les paramètres doivent satisfaire à des critères de sélection de plus en plus sévères.

#### • Fenêtre en temps après l'anode

Comme le représente la figure 5.14, sur laquelle les limites possibles de la durée entre un signal d'anode et les signaux de cathodes associées sont reportées, le premier critère d'attribution d'une cathode à une anode est basé sur l'ouverture d'une fenêtre en temps à partir de l'instant correspondant au signal d'anode. Cette fenêtre en temps est caractéristique de la ligne à retard considérée : c'est la longueur en temps de la ligne déterminée lors de son étalonnage.

Le détecteur ayant une cathode de ligne à retard  $X$  de longueur  $T_{LRX}$ , avec à gauche un pré-amplificateur dans lequel le temps de propagation est noté  $t_{PAgauche}$  et à droite un préamplificateur dans lequel le temps de propagation est noté  $t_{PA droite}$  nous recherchons les signaux associés suivants :

- différents  $t_{Xgauche}$  compris entre  $t_A + t_{PAgauche}$  et  $t_A + t_{PAgauche} + T_{LRX}$
- différents  $t_{Xd droite}$  compris entre  $t_A + t_{PA droite}$  et  $t_A + t_{PA droite} + T_{LRX}$

On répertorie tous les signaux de localisation possibles en prenant une fenêtre en temps légèrement supérieure à la longueur de ligne : 400 ns.

#### • Critère de sélection par la longueur de la ligne à retard

Il faut ensuite associer les signaux ainsi répertoriés et trouver les combinaisons de signaux correspondant effectivement à un même fragment de fission. On utilise alors la corrélation en temps entre signaux de cathode et d'anode. Puisque les signaux de cathode doivent satisfaire :

$$T_{LR} = (t_{Xgauche} - t_A) + (t_{Xd droite} - t_A)$$

alors, si l'on représente  $(t_{Cd droite} - t_A)$  en fonction de  $(t_{Cgauche} - t_A)$  comme l'illustre la figure 5.15, on obtient une bande s'appuyant sur une droite décroissante de pente -1, entourée d'un



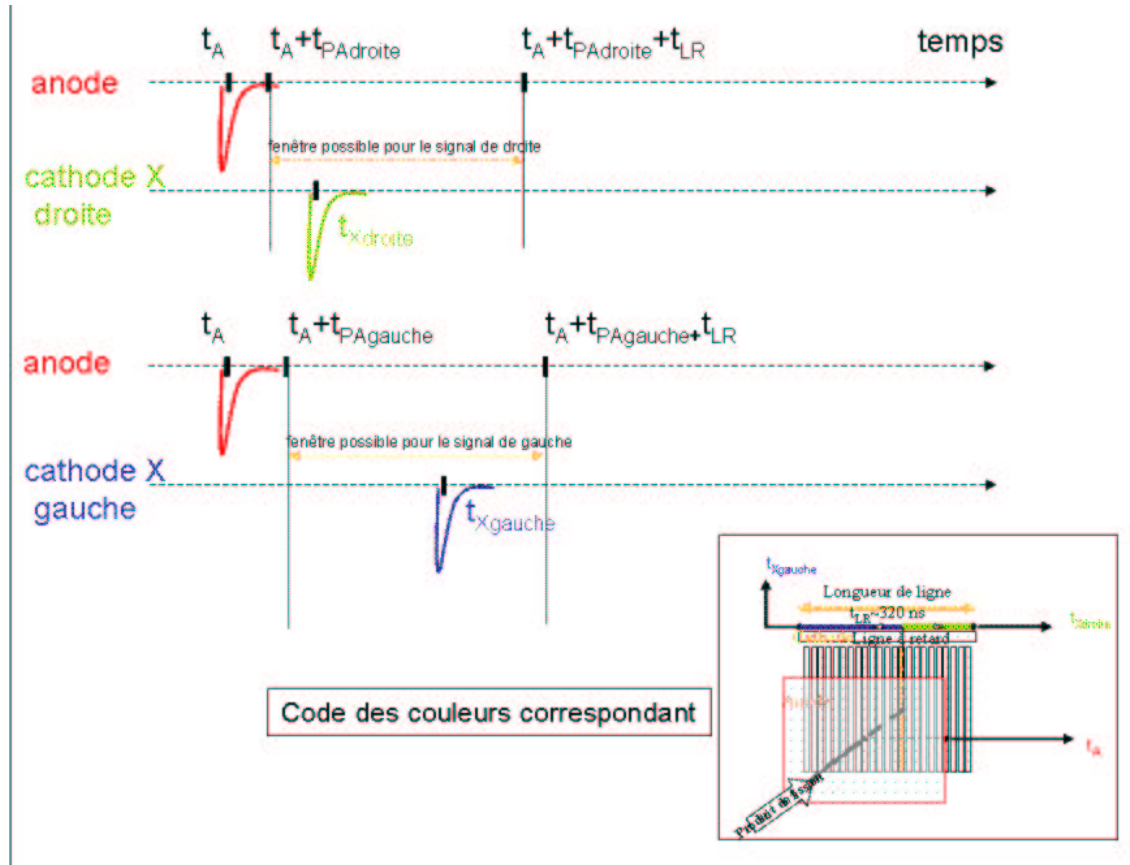


FIG. 5.14 – Principe de recherche des signaux de cathode associés à un signal d'anode survenu à l'instant  $t_A$  : la zone en temps où peuvent être observés des signaux de cathode dépendent de la longueur de la ligne à retard  $T_{LRX}$  correspondante. Trois instants  $t_A$ ,  $t_{XGauche}$  et  $t_{XDroite}$  sont représentés avec le parcours associé des charges générant les signaux. On rappelle les codes des couleurs en bas à droite qui reprend la figure 5.12. Les points noirs y symbolisent les pré-amplificateurs, dans lesquels un retard  $t_{PAGauche}$  ou  $t_{PADroite}$  est introduit.

fond continu d'événements à rejeter, c'est à dire ne présentant pas la corrélation attendue entre les signaux d'un même événement sur le détecteur.

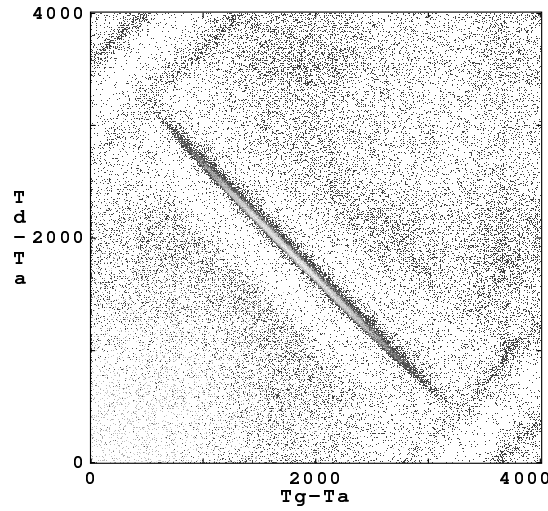


FIG. 5.15 – Représentation bidimensionnelle de la différence en temps ( $t_{Cdroite} - t_A$ ) entre un signal d'une extrémité et une anode vs la différence en temps ( $t_{Cgauche} - t_A$ ) entre un signal de l'autre extrémité et l'anode. La bande étroite correspond aux signaux corrélés par la relation  $T_{LR} = (t_{Xgauche} - t_A) + (t_{Xdroite} - t_A)$  les rendant potentiellement associés à un événement de fission dans le détecteur.

En sélectionnant les événements appartenant à cette bande, on rejette les signaux de cathode attribués à tort à l'anode en question. On commence par imposer une largeur de bande assez lâche (50 ns) pour sélectionner les couples possibles associés à une anode. Si plusieurs configurations sont possibles, on réduit la fenêtre à une largeur qui dépend du détecteur, mais de l'ordre de 30 ns.

Si une configuration satisfait les conditions, elle est enregistrée. Si plusieurs configurations restent possibles, un autre critère, expliqué dans la suite, est appliqué.

Pour tenir compte de la possibilité des empilements pour les signaux de cathodes, il faut considérer une bande assez large, afin de ne pas manquer un signal éventuellement caché par un plus grand, et pas tout à fait au même temps : c'est le grand signal qui devient alors représentatif du petit. Cette souplesse doit être aussi appliquée au critère sur les amplitudes suivant.

### • Rapport d'amplitudes

On s'attend en effet à ce que le rapport des amplitudes entre signaux d'une même ligne à retard associés à une anode soit centré autour de 1. En effet, les signaux de bout de ligne résultent de l'injection d'un signal unique en un point intermédiaire de la ligne. Sans atténuation dans la ligne (à gain identique des chaînes électroniques), on s'attendrait à voir des signaux de même amplitude aux deux extrémités. Ce qui diffère d'un signal à l'autre, c'est l'atténuation subie le long du parcours dans la ligne à retard : aussi un événement ayant lieu dans une bande bordant le détecteur produira un signal atténué à l'autre bout de la ligne à retard, mais le rapport des amplitudes reste confiné, selon le temps d'arrivée du signal dans l'une des extrémités, dans une bande assez étroite autour de 1, comme celle représentée sur la figure 5.16. Cette corrélation élargie permet d'extraire les jeux de signaux de cathode probables.

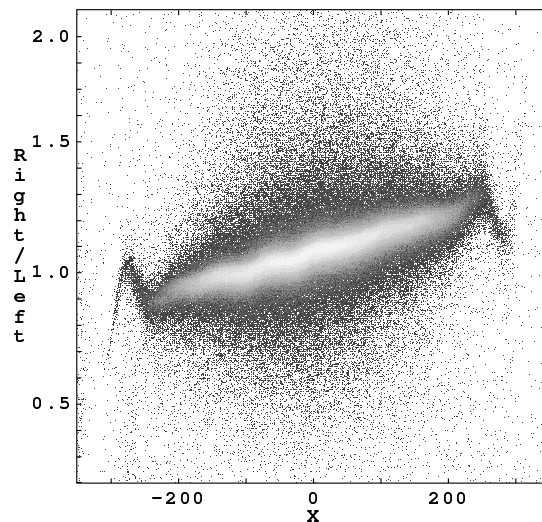


FIG. 5.16 – Représentation du rapport des amplitudes des signaux de cathodes associés à une anode en fonction de la position à laquelle l'un des deux est repéré. Ce rapport est centré sur 1 et la pente est due à l'atténuation des signaux le long de la ligne à retard.

Si après cette nouvelle sélection une configuration est gardée : c'est la bonne. Si plusieurs configurations sont encore possibles, on compare les amplitudes à celle de l'anode considérée et on garde la plus proche. Si aucune configuration n'est gardée, alors on assouplit les critères en gardant le rapport le plus proche des bornes en question.

On procède de la même façon pour toutes les lignes à retard.

Nous obtenons, à l'issue de ces différents traitements, un ensemble de données correspondant

à des configurations de coïncidences certainement associées à des événements de fission ayant eu lieu dans une des cibles engagées dans le jeu de détecteurs considéré.

Sont associés aux signaux d'anodes la différence de temps entre les signaux de cathodes retenus pour les critères précédents.

Les différences de temps ( $t_{Cgauche} - t_{Cdroite}$ ) et ( $t_{Chaut} - t_{Cbas}$ ) ainsi enregistrées nous serviront ensuite à calculer la position des ions sur les détecteurs.

Nous allons ensuite exploiter les paramètres des signaux correctement associées pour calculer l'énergie du neutron qui a généré la fission, l'angle d'émission des produits de fission, et la position sur la cible où elle a eu lieu.

## 5.5 Mise en forme et exploitation des données

### 5.5.1 Calcul de l'énergie du neutron associée à un événement

Nous avons rappelé le principe de mesure par temps de vol et la corrélation temps-énergie dans le paragraphe 3.4.1 où nous avons souligné le fait que la mesure ne permet d'accéder, pour chaque signal, qu'à son décalage par rapport au déversement de protons sur la cible de spallation. Ainsi, le temps mesuré inclut une partie fixe dépendante des longueurs de câbles, le temps de vol proprement dit ( $T_{TOF}$ ) et le temps que met le neutron pour se modérer en sortie de cible ( $t_{mod}$ ). Nous avons alors introduit la distance de modération  $\lambda$ , plus commode à manipuler que le temps de modération.

L'énergie

$$E_n = \frac{1}{2}mv_n^2 \quad (5.3)$$

s'obtient donc à partir de

$$v_n = \frac{L_{geom} + \lambda}{t_{reel}(signal)} \quad (5.4)$$

De plus, dans le paragraphe 3.5.2, nous avons décrit la possibilité d'utiliser le gamma-flash comme référence en temps, puisque la différence en temps entre signal et gamma-flash

$$\Delta t = t_{mes/PS}(signal) - t_{mes/PS}(gammaflash) = t_{reel}(signal) - t_{reel}(gammaflash) \quad (5.5)$$

est accessible expérimentalement avec précision, comme nous l'avons écrit dans le paragraphe 5.4.2.

ainsi :

$$v_n = \frac{L_{geom} + \lambda}{t_{reel}(gammaflash) + t_{mes/PS}(signal) - t_{mes/PS}(gammaflash)} \quad (5.6)$$

Le temps associé à l'événement de fission est celui d'arrivée des signaux sur les détecteurs entourant la cible. Ces deux instants sont très proches (coïncidence) et diffèrent de moins d'1 ns de l'instant d'impact du neutron ayant généré la fission.

Une moyenne  $t_{mesmoy}$  entre les 2 instants  $t_{mes/PS}(signal1)$  et  $t_{mes/PS}(signal2)$  constitue donc le temps de parcours du neutron depuis son émission dans la cible de spallation de n\_TOF jusqu'à l'impact sur la cible d'actinide de notre montage. Ce n'est pas le temps de vol qui, lui, correspond au temps mis pour parcourir la distance entre la face de sortie de la cible et l'échantillon.

La longueur géométrique est dans un premier temps celle donnée par les géomètres de l'ordre de 184,4 m. En supposant donc le centre de la chambre à 184,4 m de la face de sortie du plomb, on obtient un temps de l'ordre de  $t_{ref\gamma} \approx 615$  ns.

On ajuste ensuite la longueur de vol géométrique en ajustant l'énergie d'un résonance dont l'énergie est bien connue dans la section efficace d'une cible de référence comme l' $^{235}\text{U}$ . Ainsi la résonance à 8,78 eV permet-elle d'ajuster le paramètre  $L_{geom}$  à 183,6 m pour la distance associée à la cible d' $^{235}\text{U}$ . La distance est ensuite calculée pour chaque cible, connaissant l'espacement entre elles (voir schéma 5.2).

### 5.5.2 Localisation des produits de fission sur les détecteurs

Il ne s'agit pas seulement de déterminer la bande touchée, mais de donner une valeur de la position avec une meilleure précision que la largeur de ces bandes (2 mm). Plusieurs bandes étant touchées, il est possible d'accéder au centre de gravité de la distribution des bandes touchées.

La localisation sur le détecteur du passage du produit de fission exploite les données précises de temps extraites des signaux des cathodes. On remonte à la position sur chaque électrode en utilisant les différences en temps  $t_{Xgauche} - t_{Xdroite}$  et  $t_{Yhaut} - t_{Ybas}$ , dont, respectivement, les positions X et Y dépendent linéairement. L'équation associée fait intervenir les valeurs  $T_{LRX}$  et  $T_{LRY}$  longueurs totales en temps de chaque ligne à retard.

$$X = c_1 \times (t_{Xgauche} - t_{Xdroite}) + c_0 \quad (5.7)$$

où  $c_1$  ne dépend que de la vitesse de propagation dans la ligne à retard. En principe, on peut obtenir les constantes par repérage des bords extrêmes du spectre  $t_{Xgauche} - t_{Xdroite}$ , en effet, ils correspondent aux limites géométriques du détecteur : +100 mm et -100 mm. Regardons ces limites sur la figure 5.17, en échelle logarithmique : la longueur de ligne à retard apparaît aux deux extrémités : environ 320 ns.

On détermine  $c_0$  en déterminant le milieu des bornes de la distribution ( $t_{Xgauche} - t_{Xdroite} = 0$ ), mais pour  $c_1$ , les bords de la distribution ne sont pas francs, car l'angle augmentant, le nombre

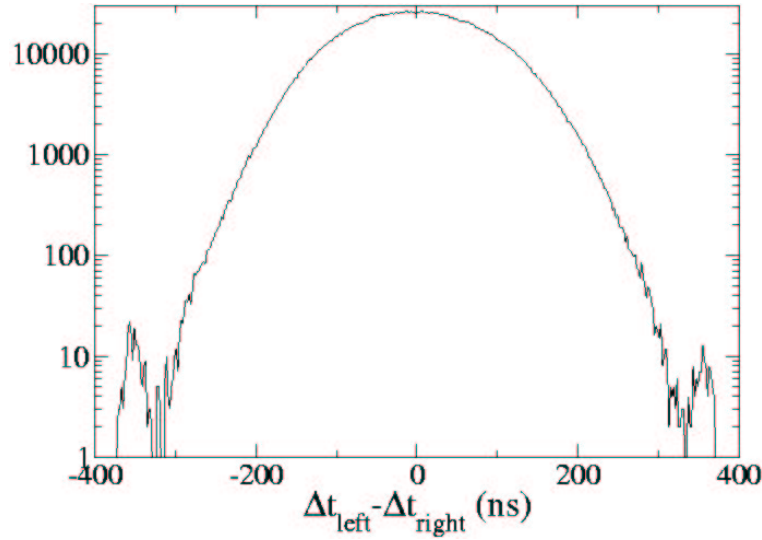


FIG. 5.17 – Distribution  $\Delta t_{Xgauche} - \Delta t_{Xdroite}$  pour une ligne à retard.

de produits de fission détectés diminue fortement. On utilise donc une méthode plus précise : la mesure du temps de propagation d'une impulsion provenant d'un générateur et injectée à différents endroits de la ligne à retard. C'est la méthode d'étalonnage décrite dans le paragraphe suivant.

On obtient la valeur  $Y$  de la même manière.

### 5.5.3 Etalonnage temps - position des lignes à retard

L'étalonnage en position des cathodes permet d'établir la correspondance durée - longueur de ligne. Elle s'effectue grâce à un générateur d'impulsions carrées (période 1 ms, amplitude crête à crête 2 V) connecté au pré-amplificateur d'anode, et injecté via un câble et un circuit d'injection ( $R=47\ \Omega$ ,  $C=1\text{pF}$ ) dans les connecteurs des bandes de la cathode. Les signaux de sortie des 2 pré-amplificateurs d'extrémités de ligne à retard sont enregistrés sur les 2 voies d'un oscilloscope  $t_{C2}$  et  $t_{C1}$ , déclenché par l'une des voies ( $t_{C1}$ ). Pour chaque ligne, 10 mesures équidistantes sont effectuées. La différence de temps ( $t_{C2} - t_{C1}$ ) est négative et minimale quand le signal est injecté dans la bande la plus proche du pré-amplificateur 2, elle est positive et maximale quand le signal est injecté dans la bande de l'autre extrémité. Quand le signal est injecté dans la bande centrale, la différence de temps ( $t_{C2} - t_{C1}$ ) s'annule. On obtient ainsi la durée correspondant à la longueur de ligne pour chaque cathode.

Les 20 cathodes sont toutes étalonnées individuellement.

#### 5.5.4 Angles d'émission des produits de fission

La symétrie du système est cylindrique. On se place donc dans un système de coordonnées cylindriques d'axe de symétrie confondu avec la perpendiculaire passant par le centre des cibles (l'axe du faisceau) représenté sur la figure 5.18. Les coordonnées cartésiennes des produits de fission sur les détecteurs sont données par  $X1, Y1, X2$  et  $Y2$ . On calcule l'angle d'émission des 2 produits de fission  $F1$  et  $F2$ , c'est à dire l'angle que fait, avec l'axe, la droite qui les relie.

En projetant le vecteur  $\overrightarrow{F_1 F_2}$  sur l'axe (Oz), on obtient :

$$\cos \theta = \frac{D}{\sqrt{(X2 - X1)^2 + (Y2 - Y1)^2 + D^2}}$$

où  $D=34$  mm est la distance entre 2 détecteurs.

Et on détermine l'angle  $\phi$  entre l'horizontale et la projection du vecteur sur le plan de la cible :

$$\tan \phi = \frac{Y2 - Y1}{X2 - X1}$$

La symétrie du système entraîne l'isotropie de la distribution des angles  $\phi$ . Ainsi on vérifie qu'on obtient une distribution plate entre  $-\pi$  et  $\pi$  pour  $\phi$ . En revanche, la distribution de  $\cos \theta$  rend compte de l'anisotropie d'émission des produits de fission.

#### 5.5.5 Position du noyau fissionnant sur la surface de cible

Connaissant la direction de la droite joignant les deux PF, il est alors possible d'en déduire géométriquement la position du noyau fissionnant sur la cible. L'incertitude sur la détermination de la position est liée à l'incertitude sur la position de la cible entre 2 détecteurs (inférieure au millimètre).

On peut alors de reconstruire la carte d'émission de fragments de fission de chaque cible, comme celle représentée sur la figure 5.19.

En utilisant les cible de  $^{209}\text{Bi}$  et de  $^{nat}\text{Pb}$ , toutes deux bien plus large que le faisceau (10 cm de diamètre), nous avons pu observer le décalage du centre du faisceau vers le nord ouest, déjà pressenti par la comparaison des carte des inhomogénéités des cibles par mesures d'émission  $\alpha$  et des carte d'émission de produits de fission. Sur la figure 5.20 sont représentées les profils faisceaux reconstruits sur ces cibles.

Nous avons fait le panorama des différents paramètres obtenus grâce à notre dispositif expérimental de PPACS auprès de n\_TOF. Dans la suite de ce chapitre, nous verrons comment exploiter ces paramètres dans le but d'obtenir les sections efficaces, avec la méthode présentée au début du chapitre 4.

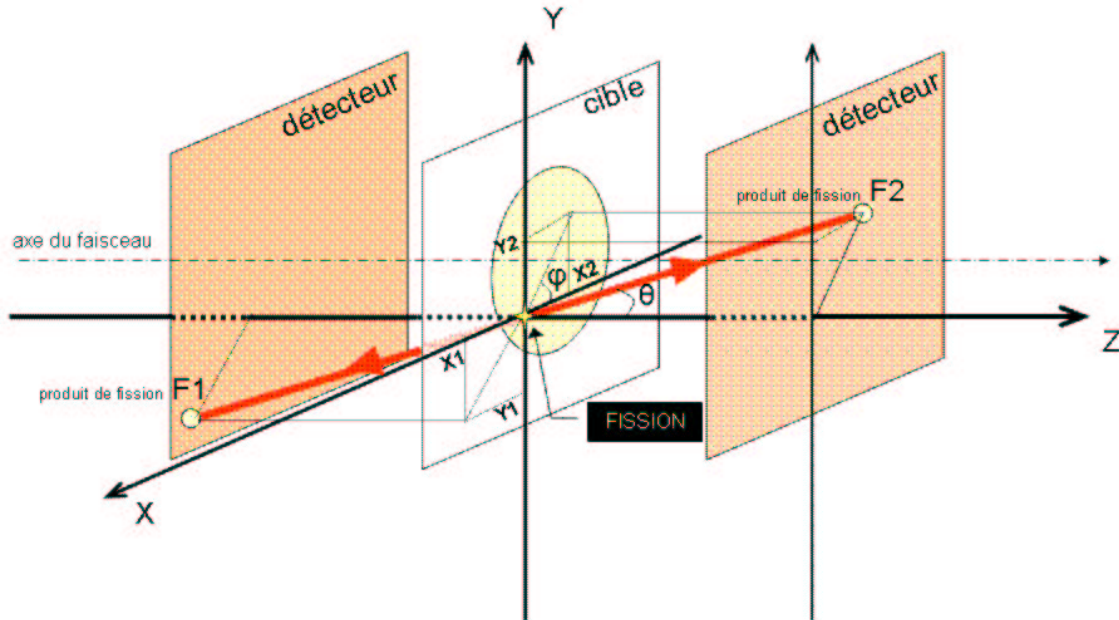


FIG. 5.18 – Avec l'hypothèse d'une émission des produits de fission à  $180^\circ$  l'un de l'autre, on représente les angles  $\theta$  et  $\phi$  permettant de repérer la droite d'émission des 2 fragments issus de la fission d'un noyau sur la cible, et détectés en F1 et F2 sur les détecteurs qui l'entourent.

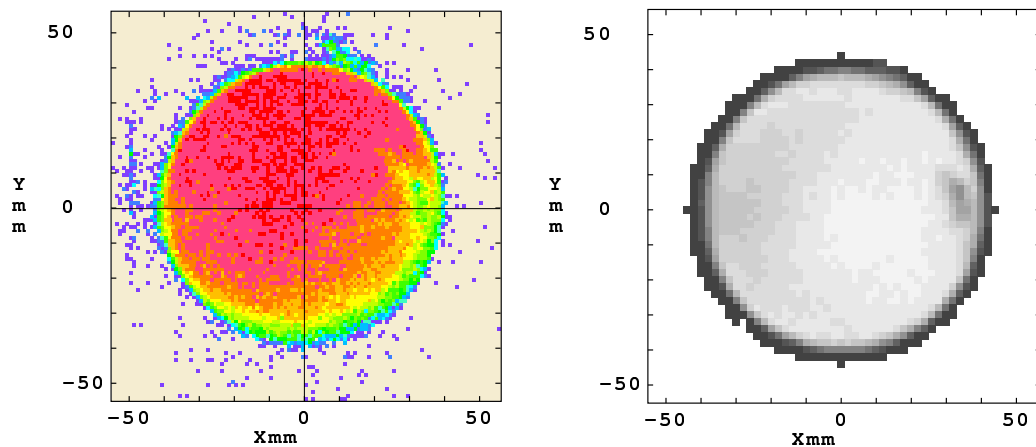


FIG. 5.19 – A gauche, carte d'émission des fragments de fission de la cible 2 d'  $^{234}\text{U}$ . Il est intéressant de comparer cette figure à celle du scanning  $\alpha$ , figure 4.14, rappelée ici à droite, effectué pour obtenir l'inhomogénéité de la cible : on retrouve notamment le petit défaut de bord de cible à droite.



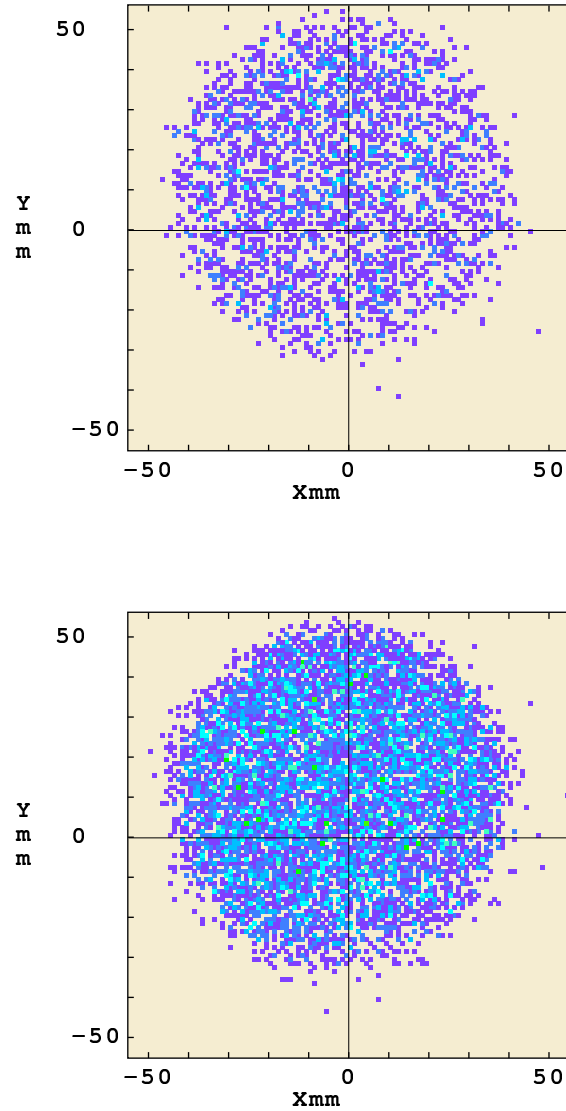


FIG. 5.20 – Distribution des noyaux fissionnant sur les cibles, plus larges que le faisceau, de  $^{nat}\text{Pb}$ , à gauche, et de  $^{209}\text{Bi}$ , à droite. Le profil faisceau est reconstruit et le décalage de son centre vers le nord ouest identifié.

## 5.6 Extraction des sections efficaces, efficacité, distribution angulaires

### 5.6.1 Rapport de sections efficaces

Rappelons la formule 4.6 du paragraphe 4.1.4 :

$$\frac{\sigma_1(E)}{\sigma_2(E)} = \frac{N_{det.1}(x, y, E)}{N_{det.2}(x, y, E)} \times \frac{N_{cib.2}(x, y)}{N_{cib.1}(x, y)} \times \frac{\varepsilon_2(E)}{\varepsilon_1(E)} \quad (5.8)$$

qui suppose, que le rapport des flux incident sur 2 cibles du dispositif est égal à 1. Ceci a été montré par simulations sur tout le spectre à moins de 1% près (paragraphe 4.6.2).

Le premier terme est le rapport des nombres de fissions détectées issues d'un élément de surface de 2 cibles différentes et dans un intervalle d'énergie donné.

Le deuxième terme permet de tenir compte des inhomogénéités des 2 cibles. Elles ont été mesurées par les méthodes décrites dans le paragraphe 4.5.5, et des écarts à la moyenne inférieurs à 20 % sont précisément mesurés. On peut utiliser ces mesures pour corriger les mesures des inhomogénéités, avec une bonne précision. Ceci permet de prendre en compte par exemple la part interceptée par le faisceau, si celui ci est décalé, comme nous l'avons montré précédemment ou non uniforme. Cependant, dans un premier temps, on pourra supposer que le faisceau est uniformément réparti sur toute la surface de cible et utiliser le nombre total de noyaux des cibles, mesuré par comptage  $\alpha$ , avec une précision meilleure que le % (tableau 4.4). Ceci se justifie en reconstruisant le profil faisceau à partir des taux de réactions sur les cibles de références, et de leur inhomogénéités mesurées.

Le troisième terme exprime le rapport d'efficacité de détection entre les détecteurs associés à des cibles différentes. Nous allons passer en revue les facteurs qui limitent l'efficacité de notre système de détection, au delà de ceux prévus par les simulations.

### 5.6.2 Efficacité géométrique des PPACs

Les calculs préliminaires - paragraphe 4.6.1 - ont montré que l'acceptance angulaire des détecteurs est limitée par l'absorption des FF dans les feuilles aux angles supérieurs à 60°, valeur plus faible que l'acceptance géométrique.

En observant la distribution des  $\cos(\theta)$  expérimentaux, on confirme les limites angulaires de détection simulées, qui prévoyaient un angle solide maximal de détection de l'ordre de 70° du côté du support.

D'une cible à l'autre, le rapport de ces efficacités est égal à 1. En effet, les épaisseurs de matière vues les produits de fission sont les mêmes d'une cible à l'autre, de plus, nous savons

que les distributions en masse sont similaires pour toutes les cibles, si ce n'est pour le  $^{nat}\text{Pb}$  et le  $^{209}\text{Bi}$ .

### 5.6.3 Efficacité des PPACs avant 1 MeV

Nous avons vu, lorsque nous avons parlé de la configuration de l'acquisition, paragraphe 5.1.3, qu'un seuil devait être appliqué pour chaque canal, afin de définir la valeur au delà de laquelle un signal devait être enregistré. Ce seuil affecte directement le taux de détection des signaux de fission de basse amplitude. Une étude approfondie, menée à Santiago de Compostella, a montré que l'effet d'un seuil trop élevé se faisait sentir en dessous de 10 MeV, sur le nombre de noyaux lourds détectés par le détecteur du côté du support de cible. La perte de ces noyaux lourds en coïncidence avec des noyaux légers détectés par l'autre détecteur affecte l'efficacité de détection [131]. Les cibles dont la section efficace présente un seuil au delà de 10 MeV ne nécessitent pas de correction (exemple : l' $^{238}\text{U}$ ). Selon l'angle d'émission, la perte d'événement est différente, ainsi, on peut perdre jusqu'à 30% des noyaux lourds à grand angle (environ  $50^\circ$ ).

### 5.6.4 Efficacité des PPACs à haute énergie : où l'on s'intéresse aux anisotropies

La dépendance en fonction de l'angle d'émission  $\theta$  de l'efficacité des PPACs est bien décrite par la distribution en  $\cos\theta$  des événements de fission. D'après des simulations de distribution isotrope de PF atteignant les détecteurs, nous attendons une forme distribuée en  $\cos\theta$  comme sur la figure 4.15 : une partie plate aux petits angles, reflétant la détection de 100% des fragments, et une diminution de l'efficacité autour de  $\cos\theta = 0,5$  ( $\approx 60^\circ$ ) pour atteindre 0 pour  $\cos\theta = 0,3$ .

En réalité, nous avons représenté la distribution expérimentale en  $\cos\theta$  des événements, et nous avons constaté que le comportement attendu n'était pas reproduit dans la région où l'efficacité devait être plate et égale à 1. Ainsi, pour l' $^{235}\text{U}$ , représenté par exemple sur la figure 5.21, la distribution présente une pente non nulle, même aux basses énergies. D'autre part, en découpant le domaine continu d'énergie en intervalles suffisants pour obtenir un taux de comptage significatif, on s'aperçoit que les formes des distributions évoluent avec l'énergie.

Si les empilements deviennent plus probables à haute énergie, ce problème ne touche, pour les PPACs, que les localisations, puisque les signaux d'anode permettent de séparer des événements de fission séparés de quelques nanosecondes. Nous avons pallié au problème d'empilement pour les localisations en améliorant l'analyse (paragraphe 5.4.8).

Nous avons recherché ce qui pouvait affecter la distribution des  $\cos\theta$  à haute énergie : parmi les phénomènes qui apparaissent à haute énergie, et évoluent avec elle, nous avons mis en cause les distributions angulaires des produits de fission.

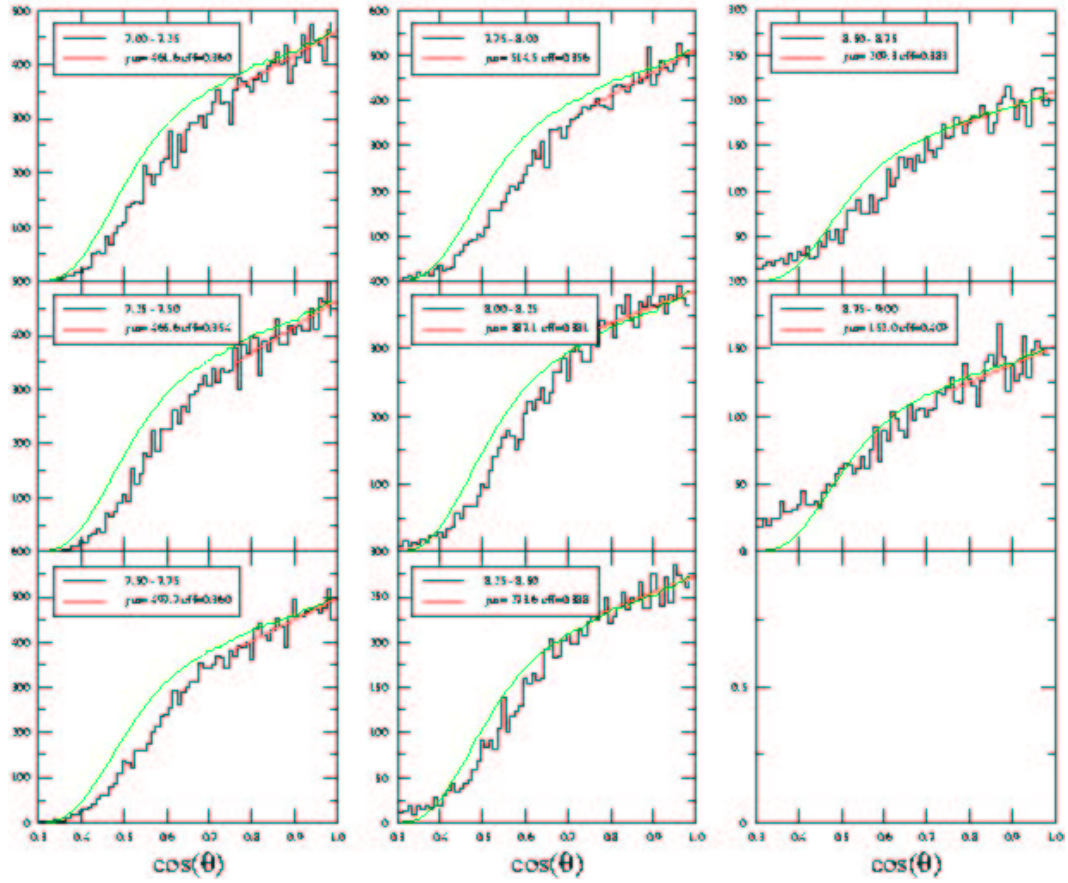


FIG. 5.21 – Distribution des  $\cos \theta$  pour différents intervalles d'énergie, pour la cible d' $^{235}\text{U}$ .

A basse énergie, la distribution des PF est supposée isotrope, aussi pour calculer l'efficacité de détection, on calcule le rapport entre une distribution équiprobable de  $\cos \theta$  et la distribution observée, dans un intervalle de référence. Ainsi sur la figure 5.21, le premier graphe en haut à gauche (case 1) correspond à l'intervalle [100 - 180 eV], et la distribution en  $\cos \theta$  est supposée proportionnelle à l'efficacité. En supposant que dans la direction frontale ( $\theta=0^\circ$ ,  $\cos \theta=1$ ), tous les PF sont détectés (peu d'épaisseur à traverser), la courbe horizontale prolongeant la valeur pour  $\cos \theta=1$  correspond à une détection à 100 % sur tout le domaine d'angle. La distribution représente donc exactement l'efficacité en fonction de l'angle, et sa valeur est 1 pour  $\cos \theta=1$ <sup>4</sup>.

Supposons cette efficacité constante sur tout le domaine d'énergie<sup>5</sup>. Si la case 1 est utilisée comme référence, le changement de forme de la distribution dans les autres domaines d'énergies par rapport à cette distribution, ou efficacité, de référence, reflète la distribution angulaire des produits de fission en fonction de l'énergie.

Le rapport entre la courbe d'efficacité 1 et la distribution pour chaque intervalle d'énergie permet d'obtenir la variation des distributions angulaires des produits de fission, et ce pour des noyaux et des domaines d'énergie encore très peu explorés.

Inversement, en utilisant les distributions angulaires mesurées sur les différents actinides, il est possible d'en déduire l'efficacité du système de détection en fonction de l'énergie.

Nous étudions dans le paragraphe suivant les distributions angulaires antérieurement mesurées, ce qui permet une comparaison avec nos résultats.

### 5.6.5 Distributions angulaires des PF

Revenons sur les études précédentes concernant la distribution angulaire des produits de fission : différentes mesures effectuées sur les noyaux considérés mettent en évidence la dépendance en énergie de l'anisotropie d'émission des produits de fission. Une étude des distributions angulaires a été menée [131, 132] afin de compiler des données présentées sous différentes formes.

A basse énergie, quelle que soit le noyau fissionnant, l'émission des produits de fission est isotrope, mais quand le neutron incident atteint une énergie supérieure à quelques centaines de keV, il a été observé des anisotropies piquées soit vers l'avant soit à  $90^\circ$ .

Des paramètres ont été introduits pour étudier ce comportement quantitativement. L'anisotropie est traitée en paramétrant la distribution angulaire  $W(\theta) = 1 + B \cos^2(\theta)$  où B est le paramètre d'anisotropie. Il rend compte du rapport d'émission entre la direction frontale et la direction latérale :  $W(0^\circ)/W(90^\circ) - 1$ .  $W(\theta)$  varie rapidement aux énergies seuils de fission, entre

---

<sup>4</sup>ce qui reste à vérifier

<sup>5</sup>Cette hypothèse va s'avérer discutable au vu des résultats d'étape présentés dans le chapitre suivant, en considérant le transfert de moment, et la symétrisation de la distribution en masse des PF.

les énergies desquels des marches sont observées. Quand le paramètre  $B$  est positif, la direction frontale est favorisée, quand il est négatif, c'est la direction latérale qui l'est.

La variation du paramètre  $B$  avec l'énergie est donc une caractéristique d'un noyau. Nous avons cherché à représenter les distributions angulaires, afin de vérifier que le comportement de toutes les cibles d'un même noyau était similaire, et que ce comportement était en accord avec les mesures précédentes. La figure 5.22 donne ces graphes pour le  $^{232}\text{Th}$  et l' $^{234}\text{U}$ .

Pour l' $^{235}\text{U}$  avec des neutrons lents, l'émission est isotrope et sert de référence [133, 134, 135], mais à partir de 500 keV, elle devient anisotrope.  $B$  est toujours positif [136].

Pour l' $^{238}\text{U}$ , des données récemment étudiées ne s'étendent que jusqu'à 20 MeV [134]. Seules celles obtenues par Tutin s'étendent jusqu'à 160 MeV [137].  $B$  est toujours positif.

Pour l' $^{234}\text{U}$ , des comportements singuliers sont observés au voisinage des seuils, et pour certaines énergies, la direction latérale peut même être favorisée (paramètre d'anisotropie négatif) [135, 136]. A partir de 20 MeV, nos données, représentées sur la figure 5.22, ont un comportement singulièrement différent de celles qui sont mesurées, tandis qu'elles reproduisent très bien l'évolution du paramètre d'anisotropie à basse énergie. Ce qui nous laisse supposer que l'anisotropie n'est pas seule en jeu dans la variation de la distribution en  $\cos \theta$  avec l'énergie...l'efficacité pourrait bien elle aussi dépendre de l'énergie.

Pour l' $^{232}\text{Th}$  : aucune mesure de distribution angulaire n'a été faite au delà de 20 MeV en dehors de celles de Tutin [137]. En comparant nos données à ces dernières, nous trouvons un bon accord entre les comportements du paramètre d'anisotropie, quelque soit l'énergie.

Pour l' $^{233}\text{U}$  : A partir de 10 MeV, la distribution présente de grandes variations. Pas de mesures après 20 MeV.

Pour l' $^{237}\text{Np}$  : Aucune donnée au delà de 20 MeV.

Cette méthode nous permet ainsi d'obtenir les distributions angulaires des produits de fission émis sur des noyaux encore très peu mesurés et sur un domaine d'énergie continu et très étendu. Ces résultats encore à l'étude sur les distributions angulaires sont susceptibles d'apporter des informations supplémentaires sur les noyaux, ce qui n'apparaissait pas dans nos objectifs au départ. Sur le chemin de ces objectifs, une étape est franchie avec les résultats intermédiaires décrits dans le chapitre suivant.

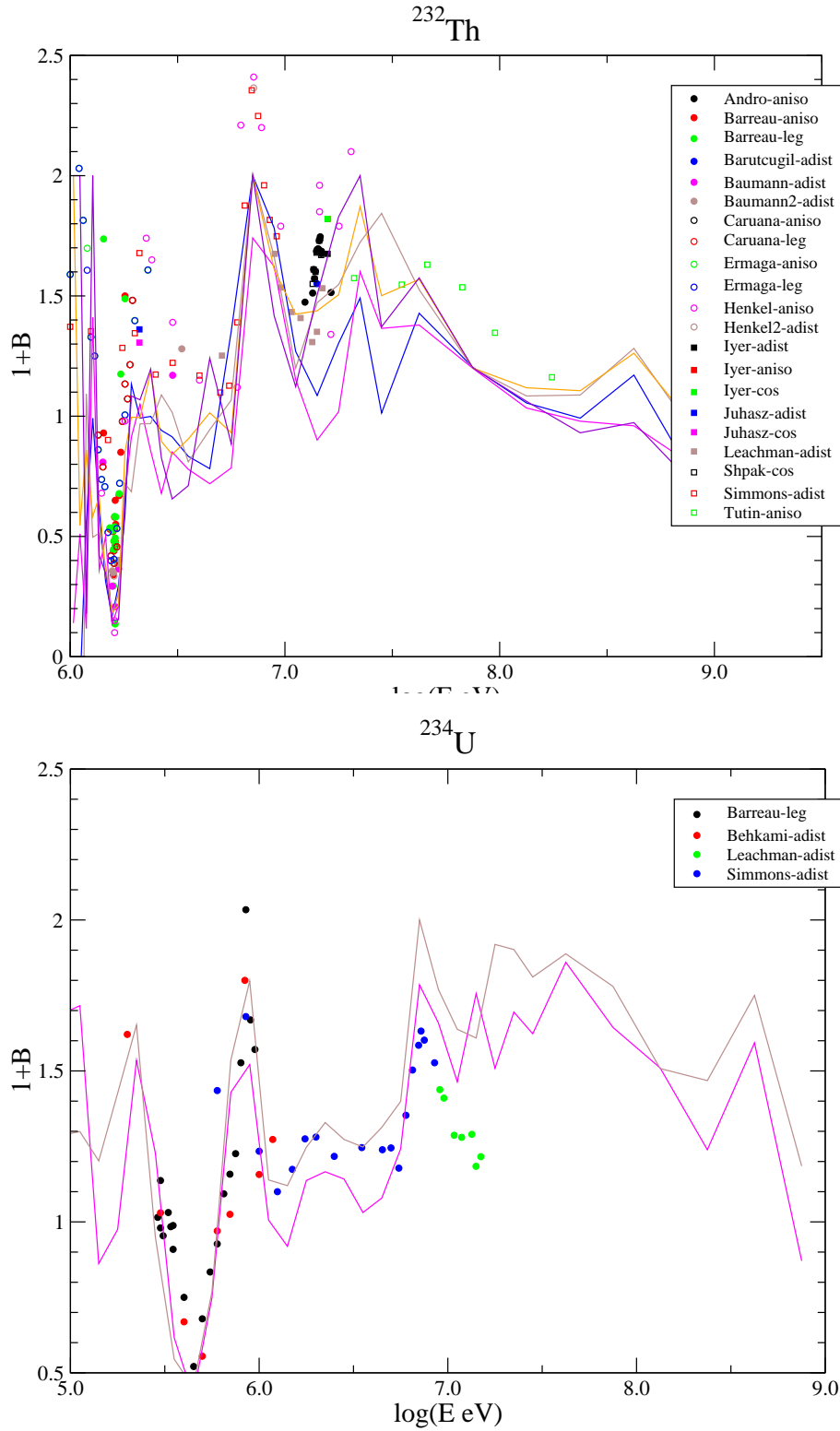


FIG. 5.22 – Comparaison entre données précédentes et les dernières mesures à n\_TOF, pour le  $^{232}\text{Th}$  et l' $^{234}\text{U}$ , des coefficients d'anisotropie  $B+1$ . Les lignes continues sont les résultats obtenus avec les PPACs pour chaque cible de l'isotope considéré (5 cibles de  $^{232}\text{Th}$  et 2 cibles d' $^{234}\text{U}$ ).

## Chapitre 6

# Résultats et discussion

### 6.1 Validation de la méthode de mesure, flux de neutrons à n\_TOF

Nous allons montrer que notre système de mesure est performant en vérifiant que l'on reproduit très bien les résultats obtenus précédemment, notamment à basse énergie pour des cibles de référence bien connues.

Les résultats d'étape peuvent se présenter sous forme de rapport à la section efficace des cibles de référence. Ensuite en multipliant ce rapport par la section efficace recommandée de la référence, on peut obtenir la section efficace cherchée. Ceci nécessite de prendre en compte l'incertitude sur la référence choisie.

Nous nous bornerons ici à présenter des résultats faisant intervenir des taux de réaction normalisés, c'est à dire normalisés à une valeur connue avec précision pour une certaine énergie, dans une zone assez stable. Comme nous l'avons développé dans le paragraphe 4.1.4 traitant de la méthode de mesures, et rappelé dans le paragraphe 5.6.1 sur la méthode d'extraction des rapports de sections efficaces, c'est une étape intermédiaire sur le chemin du rapport des sections efficaces, qui comme c'est d'usage, seront présentées à terme par rapport à l' $^{235}\text{U}$ .

#### 6.1.1 $^{235}\text{U}$ à basse énergie

On peut comparer la forme des sections efficaces dans la zone entre 8 et 20 eV pour l' $^{235}\text{U}$  pour valider la méthode : en effet dans cette zone, le flux de l'installation n\_TOF est plat, il suffit alors de normaliser les taux de réaction expérimentaux aux données évaluées pour comparer la forme des résonances. On voit bien sur la figure 6.1, que les formes et amplitudes sont tout à fait comparables. Ceci nous donne confiance dans la méthode.

La résonance à 8,78 eV a d'ailleurs été utilisée pour obtenir avec précision la longueur de vol géométrique.



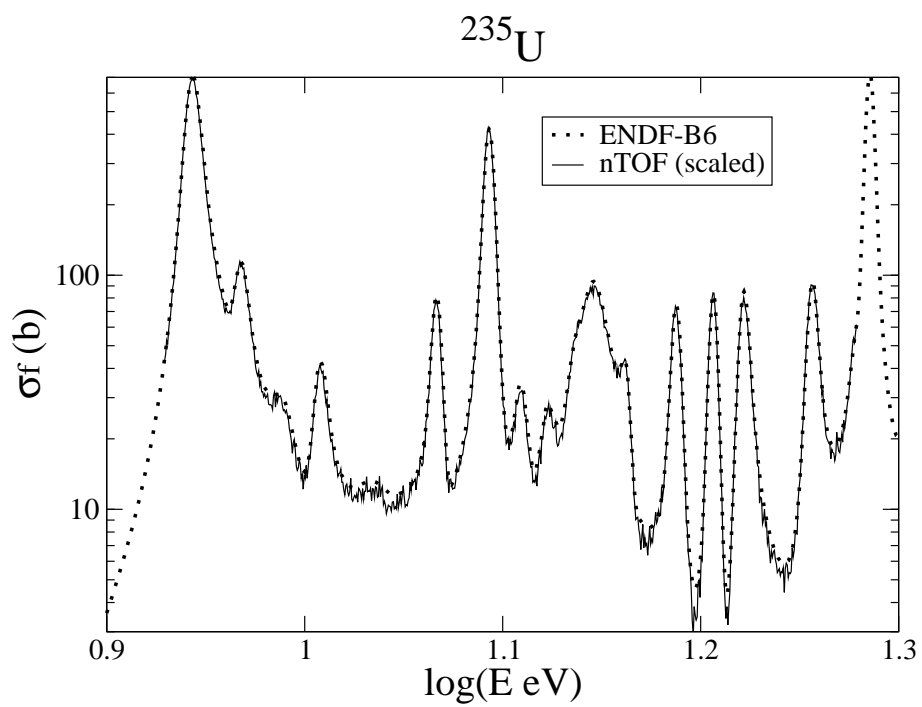


FIG. 6.1 – Comparaison de la forme du taux de réaction et de la section efficace évaluée par ENDF-BVI, dans la zone entre 8 et 20 eV.

### 6.1.2 Performances de l'installation n\_TOF

Nous voyons que nous sommes capables d'exploiter l'un des avantages de l'installation : son extension en énergie jusqu'à 1 GeV. Aux basses énergies, les fenêtres d'acquisition permettent d'obtenir des données jusqu'à 0,7 eV. La résolution accessible a permis de mieux séparer certaines résonances.

Nous avons pu en outre donner une estimation du flux de l'installation par burst de protons entre ces limites. Il est représenté sur la figure 6.2 en comparaison avec le flux simulé non collimaté. La forme du flux est bien reproduite, mais un écart de 20 % est observé dans la partie plate entre 1 eV et 10 keV, où l'effet des collimateurs se fait ressentir.

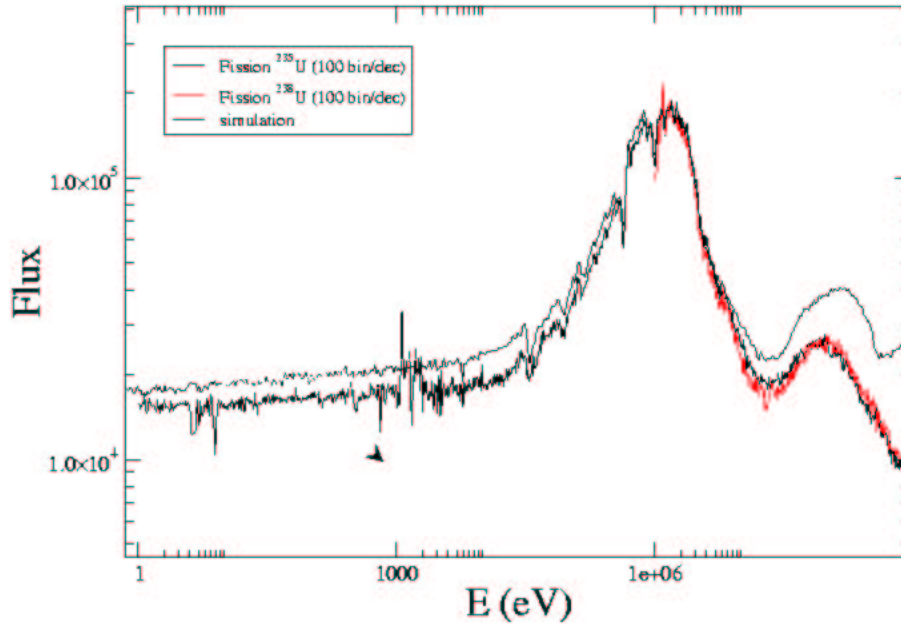


FIG. 6.2 – Comparaison de formes entre le flux simulé (11/02), intégré en mode capture et non collimaté, et les mesures faites avec les PPACs sur les cibles de référence  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ .

La zone plate est bien reproduite. Les creux d'absorption liés à l'aluminium et à l'oxygène sont reproduits. Vers 1 keV, c'est à dire non loin de la limite de zone des résonances résolues, des fluctuations sont attribuées à l'absence de résonances dans la base de données ENDF-BVI dans cette région. Nous avons représenté le flux obtenu avec les autres détecteurs (PTB et SiLi) sur la figure 6.3 jusqu'à 100 MeV. Nos données sont mises à l'échelle pour comparer les formes des flux : elle est bien reproduite, et surtout, il faut noter que la hauteur relative entre haute et basse énergie est identique, même si les mesures ont été faites pour des tailles de collimateur différentes.

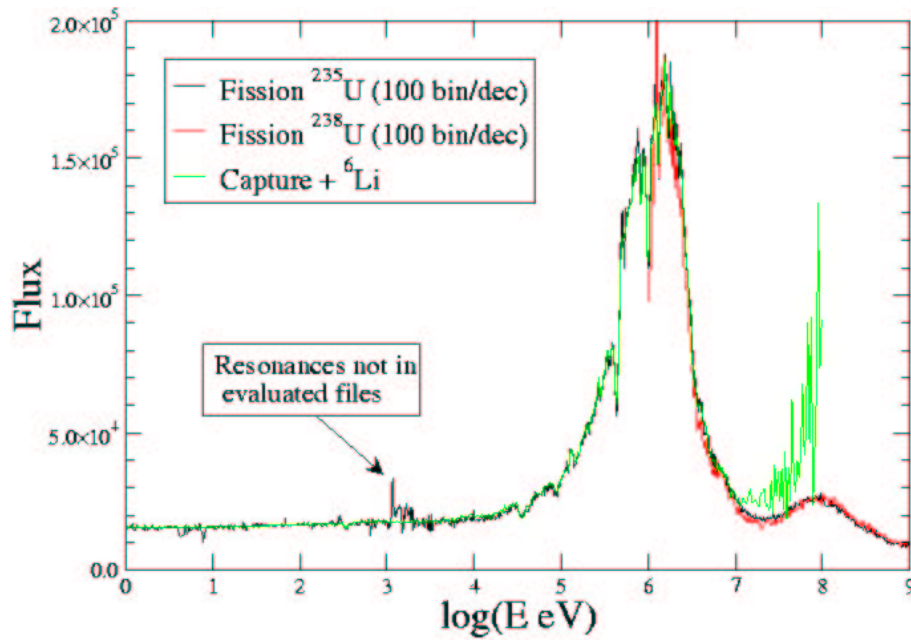


FIG. 6.3 – Comparaison de formes entre les flux expérimentaux mises à l'échelle obtenus avec les PPACs sur les cibles de référence  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$  et celui obtenu avec les autres détecteurs ( $dN/d\ln E$ ) intégré en mode capture (diamètre de collimateur 1.8 cm) à 185,2 m).

En observant les résonances à basse énergie mesurées dans les années précédents à ORNL ou IRMM, et à n\_TOF, on peut se faire une idée de la résolution accessible à n\_TOF. Nous comparons dans la région de 560 eV, les résonances de l' $^{234}\text{U}$ , sur la figure 6.4.

## 6.2 Rapport $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$

Le rapport  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  normalisé est représenté sur la figure 6.5, et pour 2 périodes de mesures. Le seuil de fission de l' $^{238}\text{U}$ , aux alentours du MeV est bien reproduit. L'écart entre les données obtenues pour cette grandeur à partir de 20 MeV est mis en relief : jusqu'à 20 % d'écart avec les données recommandées (JENDL-HE) pour la période 1 (Th). Mais les données sont plus proches des données recommandées que de celles de Shcherbakov (voir figure 2.10). Aux alentours de 6,7 MeV, une structure est observable pour les 2<sup>ème</sup> et 3<sup>ème</sup> périodes de mesures, plus clairement que pendant la première période. Cette structure est également observée dans les mesures de Lisowski et de Shcherbakov.

Comment s'expliquent les différences entre les données et les données attendues à haute énergie ?

Nous avons fait l'hypothèse un peu brutale que l'efficacité ne variait pas avec l'énergie. Or la variation de l'efficacité de détection avec l'énergie doit sûrement être prise en compte.

Au delà de quelques dizaines de MeV, la distribution en masse des produits de fission change : elle devient symétrique. Ceci favorise la détection des événements de fission, car aux noyaux lourds se substituent des noyaux moyens, traversant plus facilement les épaisseurs de matière. Nous ne maîtrisons pas précisément la distribution en masse des PF, à laquelle nos mesures n'ont pas accès, et donc les modifications associées à ce phénomène. Des corrections nécessiteraient d'utiliser des mesures antérieures.

A ces énergies, le neutron projette le noyau vers l'avant, et les fragments sont donc projetés plutôt vers l'avant. Il y a transfert de moment. Aux conditions le maximisant (60°, 150 MeV), la déviation angulaire due au transfert de moment (LMT) a été calculée négligeable devant la précision de détermination de l'angle solide des PPACS [131]. Mais son effet sur la perte d'énergie d'un noyau lourd ayant à traverser le support peut être important et doit être calculé. Ceci affecte l'efficacité de manière défavorable, puisque les fragments lourds sont envoyés vers l'arrière avec moins d'énergie et ont donc plus de mal à traverser le support de cible.

Ces deux phénomènes se compensent, mais pas forcément de la même manière en fonction de l'énergie.

Comment s'expliquent les différences entre les données d'une période sur l'autre ? Nous attribuons ces écarts aux seuils différents appliqués sur l'acquisition, particulièrement importants

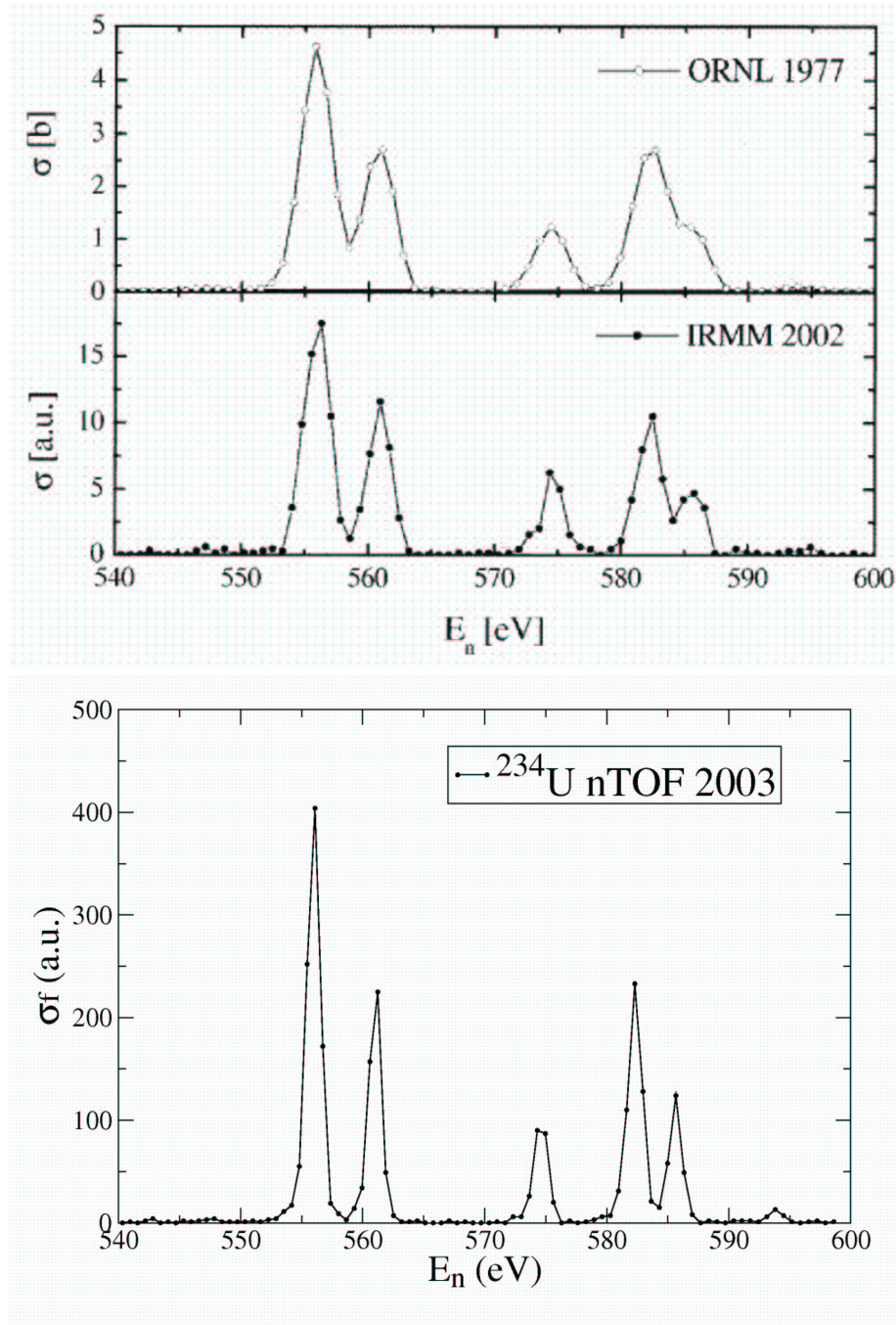


FIG. 6.4 – Comparaison des résolutions obtenues à ORNL, IRMM et n\_TOF dans la région de 560 eV sur l' $^{234}\text{U}$ .

sur certains PPACs en 2003.

## 6.3 Etat des résultats sur les actinides du cycle du thorium

Pour tous les actinides l'extension à 1 GeV des mesures est une avancée importante. Au delà de 15 MeV, seuls le  $^{232}\text{Th}$  et l' $^{238}\text{U}$  disposent de mesures de distribution angulaire des produits de fission, qui doivent pourtant être prises en compte à ces énergies.

### 6.3.1 $^{234}\text{U}$

Nous avons placé les données obtenues entre 100 keV et 1 GeV sur l' $^{234}\text{U}$  en regard des données ENDF-BVI pour cet actinide sur la figure 6.6. Le seuil est bien reproduit et les structures en étages correspondant aux seuils de fission de première et deuxième chance...sont présentes. Les deux courbes correspondent au cas où la correction d'efficacité a été ou non appliquée.

Entre 100 eV et 1 keV zone de résonances, on peut observer sur la figure 6.7 que les résonances sont reproduites en forme et en amplitudes relatives. Quatre résonances supplémentaires à 0.95, 4577, 6927 et 7855 eV, apparaissent, et nous n'avons pas pu les attribuer aux résonances provenant d'impuretés qui pourraient être présentes dans la cible : ni  $^{232}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$  ni  $^{239,240}\text{Pu}$ .

Cet isotope a été étudié très à fond dans la thèse de Carlos Paradella à Santiago de Compostella [131].

### 6.3.2 $^{232}\text{Th}$

Pour la section efficace de fission du  $^{232}\text{Th}$  obtenue, on peut observer la figure 6.8. L'accord est bon entre les données obtenues avec 2 références différentes jusqu'à à peu près 100 MeV, mais au delà un écart de 10 % est remarquable. A ces énergies viennent se greffer les problèmes d'efficacité, liés aux seuils électroniques, dont nous avons parlé plus haut.

Pour cet isotope aussi, les singularités sont observables, et le seuil bien reproduit.

Les données pour l' $^{233}\text{U}$  ne sont pas encore disponibles.

### 6.3.3 $^{237}\text{Np}$

Observons la figure 6.9 : si à partir du seuil autour de 500 eV, les données expérimentales sont en accord avec les données évaluées jusqu'à environ 10 MeV, en revanche, au delà, les données sous-estiment largement les sections efficaces par rapport à ENDF. Autour du MeV, une petite structure est vue aussi bien dans nos données que dans les données évaluées.

En observant les données à basse énergie, entre 20 eV et 50 eV, on remarque que nos données sont plus élevées que les données évaluées d'un facteur 10, comme le montre la figure 6.10.

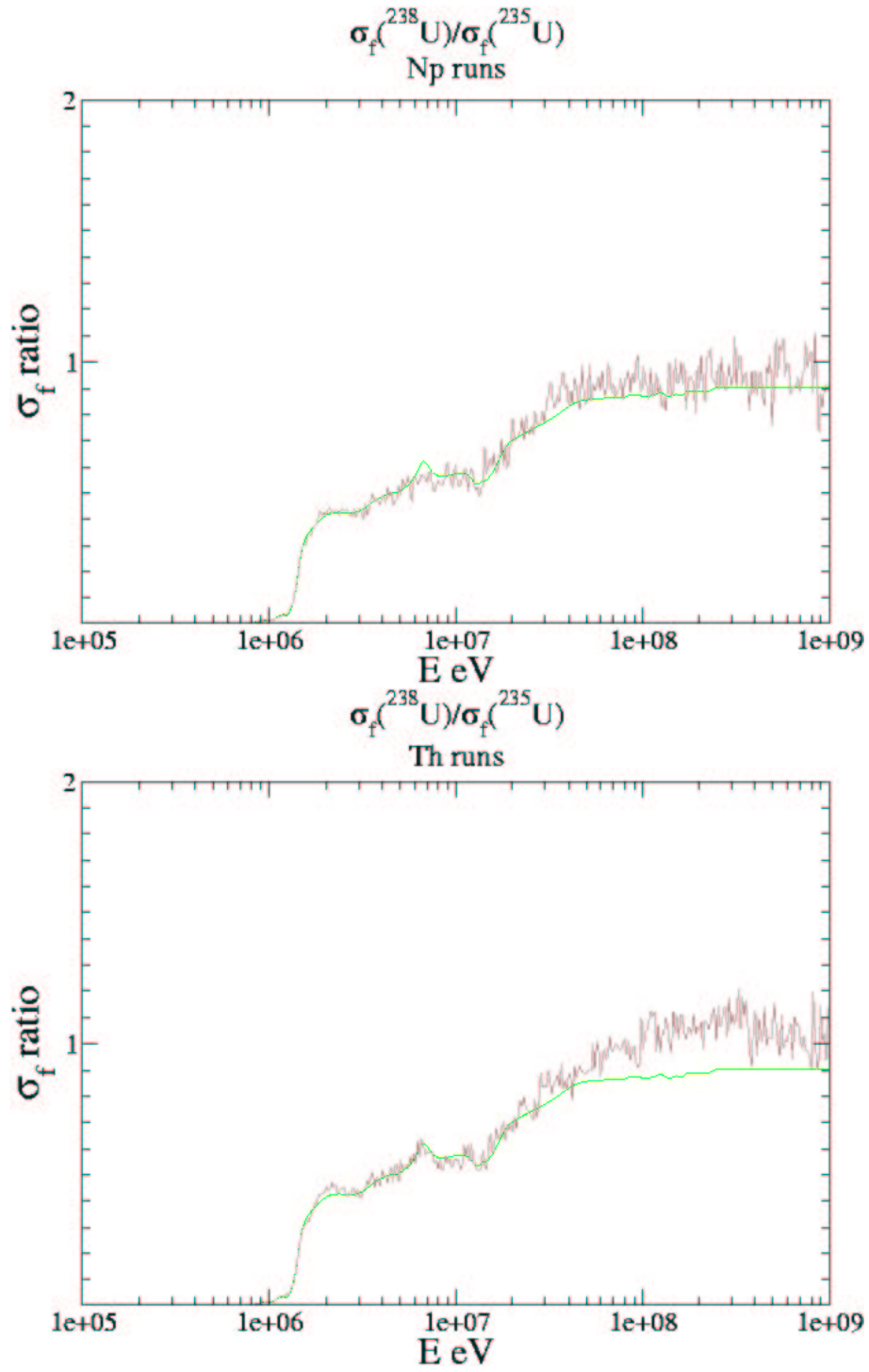


FIG. 6.5 – Rapports de sections efficaces de fission  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  pour 2 périodes de mesure différentes.

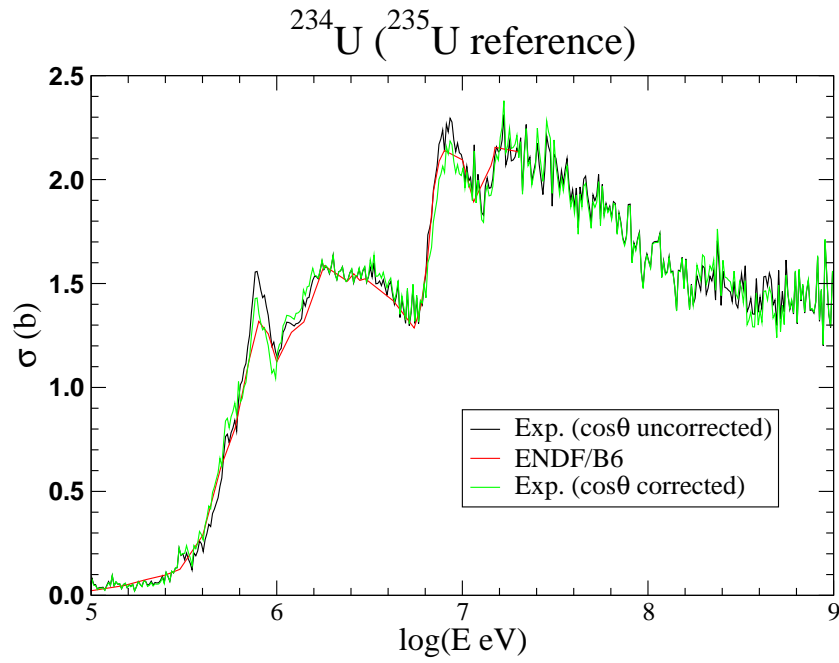


FIG. 6.6 – Comparaison des sections efficaces obtenues pour l' $^{234}\text{U}$  à ENDF-BVI entre 100 keV et 1 GeV. L'effet de la correction d'efficacité est mis en évidence.

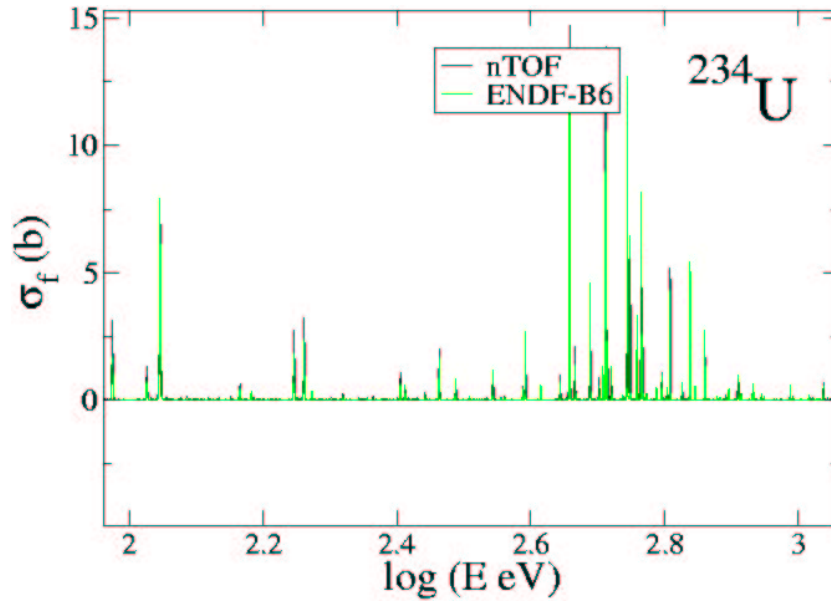


FIG. 6.7 – Comparaison des sections efficaces obtenues pour l' $^{234}\text{U}$  à ENDF-BVI entre 100 eV et 1 keV.



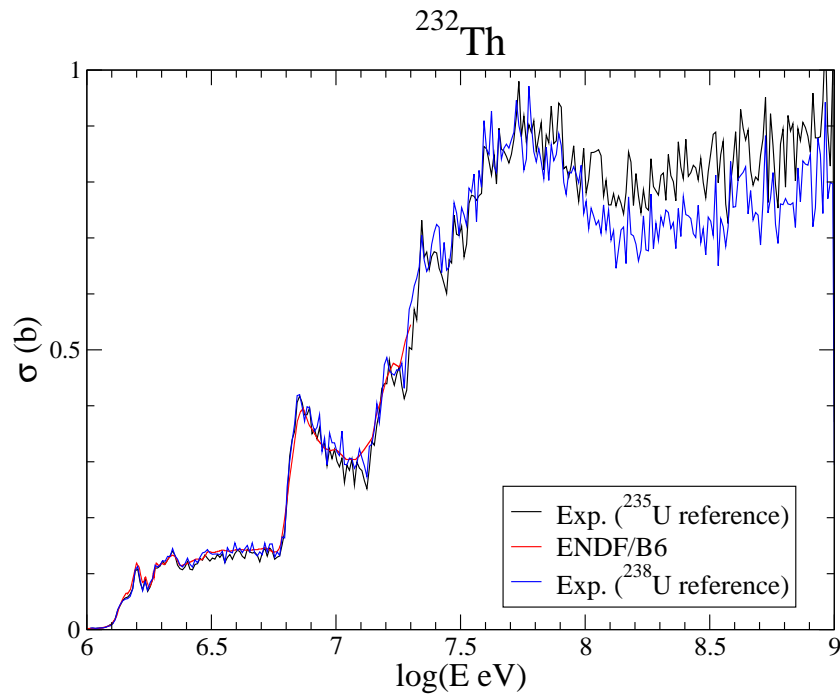


FIG. 6.8 – Section efficace normalisée du  $^{232}\text{Th}$ , obtenue à partir de l' $^{235}\text{U}$  et de  $^{238}\text{U}$ , comparée à la base évaluée ENDF-BVI.

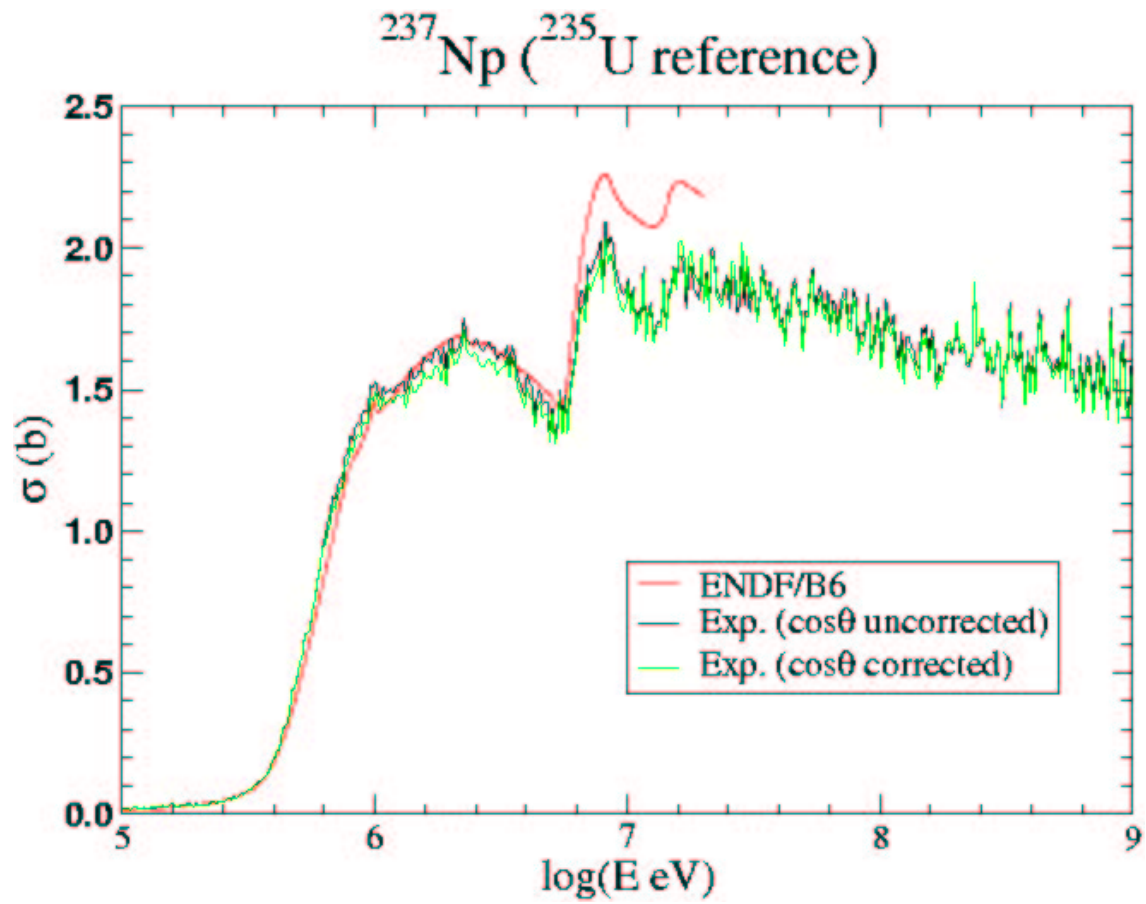


FIG. 6.9 – Résultats obtenus avec les PPACs comparés à la base de données évaluée ENDF-BVI pour le  $^{237}\text{Np}$  entre 500 eV et 1 GeV.

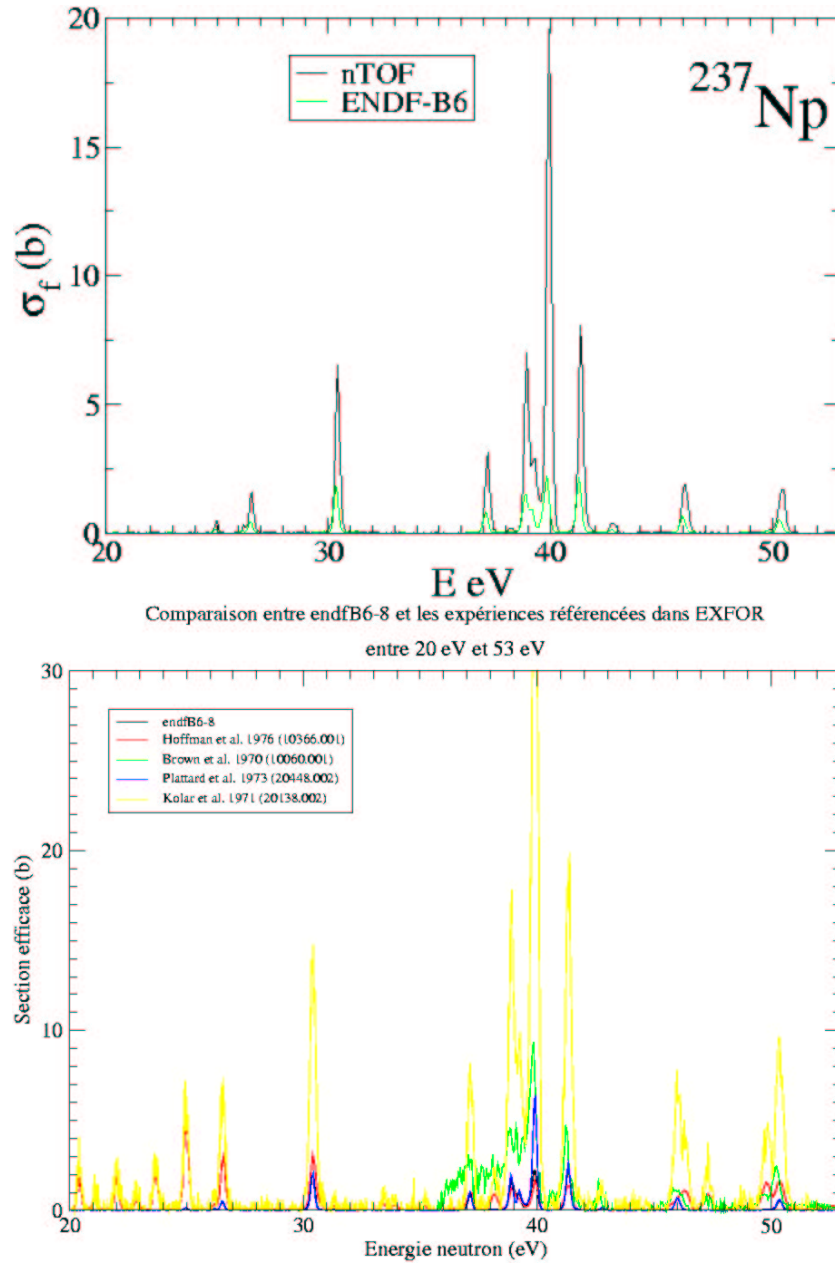


FIG. 6.10 – Entre 20 et 50 eV, un facteur 10 existe entre nos données pour le  $^{237}\text{Np}$  et les données évaluées.

En recherchant les données expérimentales utilisées pour évaluer cette base, on trouve des données qui, elles aussi, diffèrent énormément des données évaluées, quelques unes sont représentées sur le deuxième volet de la figure 6.10. L'incertitude sur nos mesures ne peut pas atteindre ce facteur 10 observé. Le rapport d'H. Derrien, traitant de l'évaluation des données à ces énergies, stipule qu'un seul jeu de données a semblé assez fiable pour être utilisé, celui de Plattard, les autres données ont été mises de côté [138]. Les données dont nos résultats semblent s'approcher ont donc été évincées de l'évaluation.

Ce panorama des résultats suggère une étude attentive des résultats à haute énergie, en se concentrant sur les problèmes d'efficacité liés aux seuils que nous avons dû appliquer sur l'acquisition pour limiter le flot de données. Au delà de 20 MeV, des écarts inexplicables, dépendant des cibles, ou dépendant des périodes de mesures, doivent être compris pour assurer la qualité des mesures à haute énergie. Cependant, bien que l'analyse soit encore en cours, nous pouvons déjà dresser un bilan positif des mesures que nous avons menées, en insistant sur les performances de l'installation et l'adaptation de notre dispositif. En guise de conclusion, le chapitre suivant invitera à la progression dans la compréhension des problèmes évoqués et à l'étude détaillée de chaque cible, en commençant par les cibles de référence, tout en effleurant l'idée de mener d'autres mesures pour tirer partie, par exemple, de notre aptitude à mesurer des distributions angulaires.



## Chapitre 7

# Conclusion

### 7.1 Faisceau de neutrons n\_TOF : installation performante

#### 7.1.1 Les acquis

L'installation n\_TOF auprès de laquelle nous avons installé notre dispositif est maintenant opérationnelle depuis 4 ans,

- le domaine d'énergie couvert : 0,7 eV à 1 GeV,
- la bonne résolution ( $\delta E/E = 0.46 \cdot 10^{-3}$  à 1 keV, inférieure à  $5 \cdot 10^{-3}$  jusqu'à 10 MeV) qui la caractérise sur une grande partie du domaine
- le flux intense de neutrons délivré en quelques ms ( $7 \cdot 10^5$  neutrons/cm<sup>2</sup> pour un paquet de protons de population nominale de  $7 \cdot 10^{12}$  protons) .

la rendent très attractive, en particulier pour les mesures de section efficaces sur des cibles très radioactives.

#### 7.1.2 Phase 2 et éventuelles améliorations

D'autres mesures ont été effectuées parallèlement aux mesures de fission avec les PPACs : une chambre à fission a mesuré l'<sup>234</sup>U, l'<sup>236</sup>U, les <sup>241,243</sup>Am et <sup>245</sup>Cm jusqu'à environ 1 MeV, des C6D6 ont fait des mesures de capture sur différents isotopes d'utilité avérée pour le cycle du thorium (thorium, américium) ou l'astrophysique (plomb, samarium). Notons également la construction récente d'un boule de BaF2 capable de mesurer des sections efficaces de capture par détection des gammas sur 4 $\pi$ . Dans les champs que nous venons d'évoquer (nucléosynthèse, nouvelles technologies, structure nucléaire), plusieurs projets sont à l'étude pour la phase 2 d'n\_TOF, qui devrait reprendre ses activités en 2006.

Plusieurs améliorations ont été envisagées pour la reprise des mesures auprès de l'installation

en 2006, après la trêve de 2005, liée aux travaux sur le LHC. La cible de spallation a présenté fin 2004 une augmentation du niveau d'activité ( $\times 10$  en 3 mois). Ce phénomène est à l'étude : la cible est peut-être abîmée, ou oxydée en surface, ce qui la rendrait inutilisable. Une nouvelle cible, optimisée, pourrait être mise en place. L'optimisation de la cible serait orientée par la volonté d'établir une nouvelle aire expérimentale, dont la longueur de vol serait 10 fois plus courte, et dans laquelle les normes de sécurité pourraient être assouplies vis à vis des cibles très radioactives (salle chaude). Les normes de sécurité sont en effet devenues plus sévères au fil des ans et rendent impossibles des mesures importantes : les deux isotopes de l'américium, qui sont plus actifs que le  $^{237}\text{Np}$ , par exemple. L'activité de l' $^{241}\text{Am}$ , dont la période est de 432 ans, devient prédominante à cette échelle de temps. Or cet isotope s'accumule dans le plutonium des combustibles usés, car il est issu de la désintégration du  $^{241}\text{Pu}$  qui ne vit que 14 ans.

Un très haut flux favoriserait les taux de comptage dans cette aire, au prix d'une résolution moins bonne. Mais le facteur 100 gagné sur le flux autoriserait des échantillons de moindre épaisseur, ce qui serait favorable vis à vis de la sécurité. On pourrait également envisager de remplacer l'eau modératrice autour de la cible par de l'eau lourde, qui durcirait le spectre actuellement favorisé en dessous de 0,5 eV.

## 7.2 PPACs en sandwich et cibles ultra-mince évaporées : un bon système de mesures

### 7.2.1 Mesures de fission performantes

La méthode innovante que nous avons utilisée pour mesurer plusieurs cibles à la fois a fait ses preuves à basse énergie où nous avons pu obtenir des résultats conformes aux résultats attendus pour les références. Energie et amplitude des résonances ont été reproduites. La forme des sections efficaces à haute énergie est cohérente avec les rares et récentes mesures sur les actinides, et nous avons pu distinguer des fissions induites par des neutrons de très haute énergie (jusqu'au GeV), en les discriminant clairement des autres réactions ouvertes à ces énergies, grâce à la détection en coïncidence.

En un temps raisonnable de quelques semaines par an, nous avons pu mesurer un peu moins d'une dizaine d'actinides, quelques actinides du cycle du thorium ( $^{232}\text{Th}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{233}\text{U}$ ), des noyaux de cible de spallation ( $^{209}\text{Bi}$ ,  $^{nat}\text{Pb}$ ), et un actinide mineur (le  $^{237}\text{Np}$ ). Nous pouvons attribuer cette réussite au soin apporté par les radiochimistes de l'IPNO pour fabriquer des cibles étendues, relativement homogènes et ultra-minces. La connaissance précise de leur cartographie permet en outre de s'affranchir de la source d'incertitude liée à des inhomogénéités.

La mesure de position nous a permis d'en déduire l'allure des distributions angulaires, et

ce jusqu'à des énergies encore jamais atteintes pour les autres actinides que l' $^{238}\text{U}$  et le  $^{232}\text{Th}$ . Ce dispositif est donc bien adapté à l'installation, il a d'ailleurs contribué à en déterminer les caractéristiques, mais il peut être amélioré.

### 7.2.2 Quelles améliorations

La détection en coïncidence est délicate et nécessite que les 2 PF puissent être détectés de chaque côté de la cible. Le problème majeur réside donc dans le support de cible ( $2\text{ }\mu\text{m}$  d'aluminium, soit  $540\text{ }\mu\text{g.cm}^{-2}$ , voir A.6), dans lesquels les fragments perdent une énergie telle qu'ils risquent, s'ils sont lourds initialement de ne pas être détectés dans le PPAC adjacent. Une technique pour réduire l'épaisseur des supports doit être trouvée si de nouvelles mesures sont envisagées. Des tests sont prévus sur un dépôt de  $100\text{ }\mu\text{g.cm}^{-2}$  de carbone que nous avons pu obtenir.

## La qualité et les limites des résultats

Les rapports de taux de réactions d'actinides par rapport aux références ont été mesurés en minimisant l'incertitude statistique, et en tirant parti d'un flux ne variant pas de plus de 1 % d'une cible à l'autre, car il n'y a pas d'auto absorption ; l'obtention des rapports de sections efficaces ne dépend que de la détermination du rapport des efficacités.

A haute énergie, un gros travail d'investigation reste à mener, en particulier pour expliquer les différences entre cibles d'une même période, ou de mesure entre périodes différentes pour une même cible. Ce problème, que nous attribuons à une perte d'efficacité liée à des seuils d'électronique trop élevés, et différents d'une période sur l'autre, n'est pas résolu.

Nous avons découvert que l'efficacité du système dépendait de l'anisotropie d'émission des fragments de fission, et on a vu qu'il était possible de reconstruire l'angle d'émission, et donc de corriger les mesures de ces effets, grâce à des mesures de distributions angulaires réalisées précédemment. Cependant nous avons supposé que l'efficacité ne dépendait pas de l'énergie, or cette hypothèse peut s'avérer fausse quand les propriétés des FF changent, notamment quand l'énergie augmente et la fission se symétrise, et quand le transfert de moment devient trop important pour le négliger. Pour cela, des simulations sont à l'œuvre.

Une fois ce problème compris, et si possible résolu, des sections efficaces absolues pourront être obtenues, avec une faible incertitude associée à la connaissance des cibles, grâce aux mesures précises de l'homogénéité par comptage  $\alpha$  et par rétrodiffusion.

Avant d'aller plus loin, nous devons valider notre système, en particulier à haute énergie, et calculer les incertitudes de mesures obtenues. La diffusion des résultats dans EXFOR sera alors



un objectif.

### 7.3 Perspectives

Une meilleure connaissance du faisceau incident permettrait de s'affranchir des incertitudes sur les sections efficaces de fission des isotopes de référence. En utilisant des mesures de diffusion n-p par exemple, dont la section efficace est bien connue, on pourrait obtenir des valeurs absolues. Des mesures d'énergie, de masse et de distribution angulaire des fragments de fission sont utiles pour comprendre les mécanismes de la fission. Notre dispositif pourrait être exploité dans le but de fournir des distributions angulaires à haute énergie. Couplé à d'autres systèmes, il pourrait servir à apporter des précisions sur le nombre de neutrons retardés émis au cours de la fission.

A haute énergie les mesures peuvent permettre de valider des codes d'évaporation.

A basse énergie, l'étude précise des résonances, en les analysant par exemple avec des programmes comme SAMMY, peuvent donner des précisions sur les propriétés du noyau. Notre capacité à atteindre des énergies toujours plus grandes et des résolutions meilleures que par le passé permet d'explorer des zones utiles pour affiner les modèles des noyaux et de leur comportement dans les interactions avec les neutrons, en apportant de nouvelles contraintes pour les modèles, et aider à la prédiction des structures observables dans les sections efficaces au seuil.

## Annexe A

# Annexes

### A.1 Définitions

#### Actinides

Famille d'éléments chimiques plus lourds que l'actinium (numéro atomique 89). Quatre actinides existent à l'état naturel : l'actinium (89), le thorium (90), le protactinium (91) et l'uranium (92). Il existe également des actinides artificiels, ce sont les transuraniens ( $Z > 92$ ) (plutonium, américium, neptunium et curium).

#### Actinides mineurs

Parmi les déchets radioactifs, les actinides mineurs constituent, eux, une très petite minorité. On en retrouve environ 600 grammes par tonne de combustible irradié, moins de 0,1%.

### A.2 Isotopes du cycle uranium et thorium

### A.3 Demi-vie et activité par mg des isotopes cités

La période des isotopes cités dans le document est rappelée ici (Decay data ENDF-B6 (Janis - NEA) et [http : //www.nucleide.org/NucData.htm](http://www.nucleide.org/NucData.htm)). L'erreur sur l'activité par mg est dominée par l'incertitude sur la période de l'isotope.

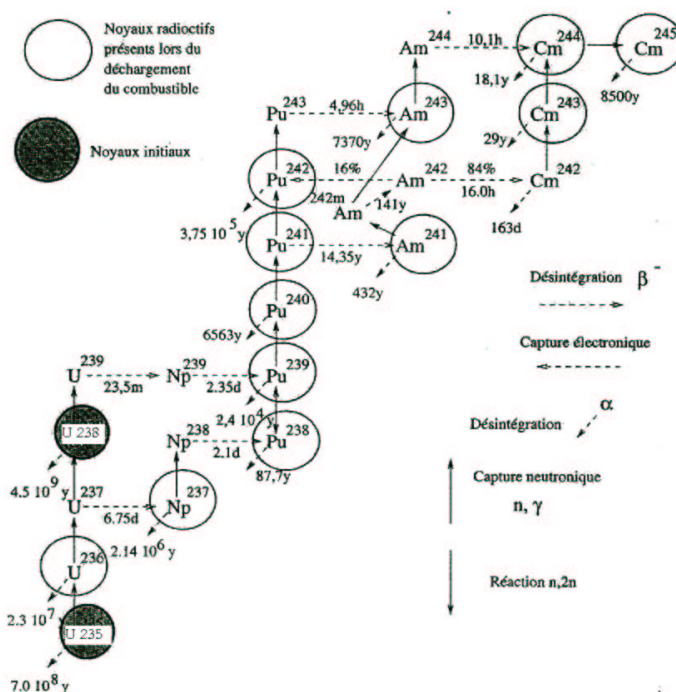
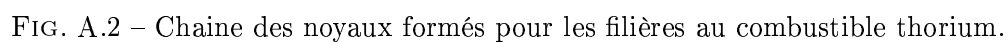


FIG. A.1 – Chaîne des noyaux formés pour les filières au combustible uranium.

isotope	demi-vie	émetteur	Activité par mg (Bq)	erreur (Bq)
$^{232}_{92}\text{U}$	69,8ans	$\alpha$		
$^{233}_{92}\text{U}$	$1,592 \cdot 10^5 \text{ans}$	$\alpha$	356600	400
$^{234}_{92}\text{U}$	$2,457 \cdot 10^5 \text{ans}$	$\alpha$	230200	500
$^{235}_{92}\text{U}$	$7,037 \cdot 10^8 \text{ans}$	$\alpha$	79,9	0,1
$^{236}_{92}\text{U}$	$2,342 \cdot 10^7 \text{ans}$	$\alpha$	2395	
$^{238}_{92}\text{U}$	$4,468 \cdot 10^9 \text{ans}$	$\alpha$	12,43	0,06
$^{232}_{90}\text{Th}$	$1,405 \cdot 10^{10} \text{ans}$	$\alpha$	4,06	0,02
$^{237}_{93}\text{Np}$	$2,14 \cdot 10^6 \text{ans}$	$\alpha$	26080	100
$^{241}_{95}\text{Am}$	432,7ans	$\alpha$	$1,27 \cdot 10^8$	
$^{244}_{96}\text{Cm}$	18,10ans	$\alpha$	$2,9 \cdot 10^9$	
$^{99}_{43}\text{Tc}$	$2,111 \cdot 10^5 \text{ans}$	$\beta^-$		
$^{129}_{53}\text{I}$	$1,57 \cdot 10^7 \text{ans}$	$\beta^-$		
$^{252}_{98}\text{Cf}$	2.645ans	$\alpha$ FS		

TAB. A.1 – Activité par mg des isotopes mesurés.



TAB. A.2 – Schéma de désintégration de l' $^{232}\text{U}$

Tab. A.3 – Schéma de désintégration du  $^{232}\text{Th}$

Parent	Produit	Demi - vie	Rapport de branchement	Mode de désintégration
$^{228}\text{Th}$	$^{224}\text{Ra}$	1,9 ans	1	alpha
$^{224}\text{Ra}$	$^{220}\text{Rn}$	3,66 j	1	alpha
$^{220}\text{Rn}$	$^{216}\text{Po}$	55,6 s	1	alpha
$^{216}\text{Po}$	$^{212}\text{Pb}$	145 ms	1	alpha
$^{212}\text{Pb}$	$^{212}\text{Bi}$	10,64 h	1	beta -
$^{212}\text{Bi}$	$^{212}\text{Po}$	1 h	0,6406	beta -
$^{212}\text{Po}$	$^{208}\text{Pb}$	2,98 e-4 ms	1	alpha
$^{212}\text{Bi}$	$^{208}\text{Tl}$	1 h	0,3594	alpha
$^{208}\text{Tl}$	$^{208}\text{Pb}$	3,05 mn	1	beta -, alpha
$^{212}\text{Bi}$	$^{208}\text{Pb}$	1 h	1,44e-4	beta -

TAB. A.4 – Schéma de désintégration du  $^{228}\text{Th}$ 

Parent	Produit	Demi - vie	Rapport de branchement	Mode de désintégration
$^{237}\text{Np}$	$^{233}\text{Pa}$	2,14 e+6 ans	1	alpha
$^{233}\text{Pa}$	$^{233}\text{U}$	27 j	1	beta -
$^{233}\text{U}$	...			

TAB. A.5 – Schéma de désintégration du  $^{237}\text{Np}$

Parent	Produit	Demi - vie	Rapport de branchement	Mode de désintégration
$^{233}\text{U}$	$^{229}\text{Th}$	1,592 e+5 ans	1	alpha
$^{229}\text{Th}$	$^{225}\text{Ra}$	7,87995 ans	1	alpha
$^{225}\text{Ra}$	$^{225}\text{Ac}$	14,8 j	1	beta -
$^{227}\text{Ac}$	$^{221}\text{Fr}$	10 j	1	alpha
$^{221}\text{Fr}$	$^{217}\text{At}$	4,9 mn	1	alpha
$^{217}\text{At}$	$^{217}\text{Rn}$	32,3 ms	1,2 e-4	beta -
$^{217}\text{At}$	$^{213}\text{Bi}$	32,3 ms	0,99988	alpha
$^{217}\text{Rn}$	$^{213}\text{Po}$	0,54 ms	1	alpha
$^{213}\text{Bi}$	$^{213}\text{Po}$	45,59 mn	0,979	beta -
$^{213}\text{Bi}$	$^{209}\text{Tl}$	45,59 mn	0,021	alpha
$^{213}\text{Po}$	$^{209}\text{Pb}$	0,0042 ms	1	alpha
$^{209}\text{Tl}$	$^{209}\text{Pb}$	2,2 mn	1	beta -
$^{209}\text{Pb}$	$^{209}\text{Bi}$	3,253 h	1	beta -

TAB. A.6 – Schéma de désintégration de l' $^{233}\text{U}$ 

Parent	Produit	Demi - vie	Rapport de branchement	Mode de désintégration
$^{238}\text{U}$	$^{234}\text{Th}$	4,468 e+9 ans	1	alpha
$^{234}\text{Th}$	$^{234}\text{Pa}$	24,1 j	1	beta -
$^{234}\text{Pa}$	$^{234}\text{U}$	6,7 h	1	beta -
$^{234}\text{U}$	$^{230}\text{Th}$	2,457 e+5 ans	1	alpha
$^{230}\text{Th}$	...			

TAB. A.7 – Schéma de désintégration de l' $^{238}\text{U}$  et l' $^{234}\text{U}$

Parent	Produit	Demi - vie	Rapport de branchement	Mode de désintégration
$^{230}\text{Th}$	$^{226}\text{Ra}$	7,538 e+4 ans	1	alpha
$^{226}\text{Ra}$	$^{222}\text{Rn}$	1,6 e+3 ans	1	alpha
$^{222}\text{Rn}$	$^{218}\text{Po}$	3,8235 j	1	alpha
$^{218}\text{Po}$	$^{218}\text{At}$	3,1 mn	2 e-4	beta -
$^{218}\text{Po}$	$^{214}\text{Pb}$	3,1 mn	0,9998	alpha
$^{218}\text{At}$	$^{218}\text{Rn}$	1,6 s	0,001	beta -
$^{218}\text{At}$	$^{214}\text{Bi}$	1,6 s	0,999	alpha
$^{214}\text{Pb}$	$^{214}\text{Bi}$	26,8 mn	1	beta -
$^{218}\text{Rn}$	$^{214}\text{Po}$	35 ms	1	alpha
$^{214}\text{Bi}$	$^{214}\text{Po}$	19,9 mn	0,99979	beta -
$^{214}\text{Bi}$	$^{210}\text{Tl}$	19,9 mn	2,1 e-4	alpha
$^{214}\text{Bi}$	$^{210}\text{Pb}$	19,9 mn	3,06 e-5	alpha
$^{214}\text{Po}$	$^{210}\text{Pb}$	0,1643 ms	1	alpha
$^{210}\text{Tl}$	$^{210}\text{Pb}$	1,3 mn	0,99993	beta -
$^{210}\text{Tl}$	$^{209}\text{Pb}$	1,3 mn	7 e-5	beta -, neutron
$^{210}\text{Pb}$	$^{210}\text{Bi}$	22,3 ans	1	beta -
$^{210}\text{Pb}$	$^{206}\text{Hg}$	22,3 ans	1,9 e-8	alpha
$^{209}\text{Pb}$	$^{209}\text{Bi}$	3,253 h	1	beta -
$^{210}\text{Bi}$	$^{210}\text{Po}$	5,013 j	1	beta -
$^{210}\text{Bi}$	$^{206}\text{Tl}$	5,013 j	1,32 e-6	alpha
$^{206}\text{Hg}$	$^{206}\text{Tl}$	8,15 mn	1	beta -
$^{210}\text{Po}$	$^{206}\text{Pb}$	138,376 j	1	alpha
$^{206}\text{Tl}$	$^{206}\text{Pb}$	4,2 mn	1	beta -

TAB. A.8 – Schéma de désintégration du  $^{230}\text{Th}$

Parent	Produit	Demi - vie	Rapport de branchement	Mode de désintégration
$^{235}\text{U}$	$^{231}\text{Th}$	7,037 e+8 ans	1	alpha
$^{231}\text{Th}$	$^{231}\text{Pa}$	1,06 ans	1	beta -
$^{231}\text{Pa}$	$^{227}\text{Ac}$	3,27 ans	1	alpha
$^{227}\text{Ac}$	$^{227}\text{Th}$	21,77 ans	0.9862	beta -
$^{227}\text{Ac}$	$^{223}\text{Fr}$	21,77 ans	0.0138	alpha
$^{227}\text{Th}$	$^{223}\text{Ra}$	18,718 j	1	alpha
$^{223}\text{Fr}$	$^{223}\text{Ra}$	21,8 mn	0,9994	beta -
$^{223}\text{Fr}$	$^{219}\text{At}$	21,8 mn	6 e-5	alpha
$^{223}\text{Ra}$	$^{219}\text{Rn}$	11,434 j	1	alpha
$^{219}\text{At}$	$^{219}\text{Rn}$	54 s	0,03	beta -
$^{219}\text{At}$	$^{215}\text{Bi}$	54 s	0,97	alpha
$^{219}\text{Rn}$	$^{215}\text{Po}$	3,96 s	1	alpha
$^{215}\text{Bi}$	$^{215}\text{Po}$	7,4 mn	1	beta -
$^{215}\text{Po}$	$^{215}\text{At}$	1,78 ms	2,3 e-6	beta -
$^{215}\text{Po}$	$^{211}\text{Pb}$	1,78 ms	0,999998	alpha
$^{215}\text{At}$	$^{211}\text{Bi}$	0,1 ms	1	alpha
$^{211}\text{Pb}$	$^{211}\text{Bi}$	36,1 mn	1	beta -
$^{211}\text{Bi}$	$^{211}\text{Po}$	2,14 mn	0,00275	beta -
$^{211}\text{Bi}$	$^{207}\text{Tl}$	2,14 mn	0,99725	alpha
$^{211}\text{Po}$	$^{207}\text{Pb}$	516 ms	1	alpha
$^{207}\text{Tl}$	$^{207}\text{Pb}$	4,77 mn	1	beta -

TAB. A.9 – Schéma de désintégration de l' $^{235}\text{U}$



## A.4 Schémas de désintégration

## A.5 Compositions isotopiques naturelles

Elément	isotope	%
Plomb	$^{204}_{82}\text{Pb}$	1, 4
	$^{206}_{82}\text{Pb}$	24, 1
	$^{207}_{82}\text{Pb}$	22, 1
	$^{208}_{82}\text{Pb}$	52, 4

## A.6 Epaisseurs de matière $\mu\text{m}$ $\mu\text{g.cm}^{-2}$

L'épaisseur exprimée en  $\text{g.cm}^{-2}$  permet de prendre en compte la densité du matériau. La relation qui existe entre l'épaisseur  $e$  exprimée en  $\text{g.cm}^{-2}$ , l'épaisseur  $l$  en cm et la densité  $\rho$  est simplement :

$$e(\text{g.cm}^{-2}) = \rho(\text{g.cm}^{-3}) * l(\text{cm})$$

En considérant les cibles composées de l'élément concerné on a :

Elément	Densité( $\text{g.cm}^{-3}$ )	Epaisseur( $\text{g.cm}^{-2}$ )	Epaisseur( $\mu\text{m}$ )
Aluminium	2,7	$38.10^{-6}$	0,15
Uranium	18,9	$300.10^{-6}$	0,15
Thorium	11,72	$300.10^{-6}$	
Mylar ( $\text{C}_5\text{H}_4\text{O}_2$ )	1,39	$210.10^{-6}$	1,5
Kapton ( $\text{C}_{23}\text{O}_5\text{N}_2\text{H}_{10}$ )	1,43	$17.10^{-3}$	125
Aluminium	2,7	$540.10^{-6}$	2

TAB. A.10 – Equivalences épaisseurs.

## A.7 Les unités du flux

### Unités de temps, ou de nombre de protons incidents

Le flux faisant intervenir le taux de réaction par unité de temps, le nombre de neutrons peut être donné par proton incident, ou plutôt par paquet de protons incidents, par cycle de 4 paquets, ou même encore par seconde. On trouvera ainsi dans les rapports différentes normalisations du

temps pour les grandeurs caractéristiques du faisceau : à un paquet (ou bunch) de  $7 \cdot 10^{12}$  protons, à un pulse : 4 paquets de protons, soit  $2,8 \cdot 10^{13}$  protons parfois rapporté à  $3 \cdot 10^{13}$ , mais encore à une unité de temps (la seconde par exemple) qui suppose en général 1 cycle de 14,4 secondes composé de 4 paquets de protons. Ainsi dans cette hypothèse  $N_{neutrons}/(3 \cdot 10^{13} \text{ protons}) = N * \frac{3}{2,8} \text{ neutrons}/(2,8 \cdot 10^{13} \text{ protons}) = N * \frac{3}{2,8} * \frac{2,8}{0,7} \text{ neutrons}/(7 \cdot 10^{12} \text{ protons})$

Et avec  $\frac{2,8}{0,7} = 4$ ,

$2,8 \cdot 10^{13} \text{ protons} \leftrightarrow 14,4 \text{ s } 3 \cdot 10^{13} \text{ protons} \leftrightarrow 14,4 * \frac{3}{2,8} 7 \cdot 10^{12} \text{ protons} \leftrightarrow \frac{14,4}{4} \text{ s}$  Ainsi un flux  $\phi$  de  $T n.s^{-1} = T * \frac{14,4}{4} n/(7 \cdot 10^{12} \text{ protons}) = T * 14,4 n/(2,8 \cdot 10^{13} \text{ protons}) Bn/(7 \cdot 10^{12} \text{ protons}) = B * \frac{4}{14,4} n.s^{-1}$

### Unités de surface, d'angle solide

Si le flux de neutrons émis par unité de temps par la cible entière dans une sphère l'entourant est  $\phi$ , alors le flux de neutrons par unité de temps et par  $cm^2$  situé à une distance  $l$  de la source est donné par  $\Phi$  tel que

$$\Phi = \frac{\phi}{4 * \pi * l^2} \quad (\text{A.1})$$

ainsi, si  $\phi$  s'exprime en  $n.s^{-1}$ , et  $l$  en  $cm$ ,  $\Phi$  s'exprime en  $n.s^{-1}.cm^{-2}$  et la quantité  $l^2 * \Phi$ , appelée **brillance** s'exprime en  $n.s^{-1}.sr^{-1}$

### Unités d'énergie, unité léthargique, intervalle léthargique

Ecrivons la relation entre  $d \log E$ ,  $d \ln E$ , et  $dE$  :

à partir de

$$\ln E = \ln(10^{\log E})$$

on obtient

$$\ln E = \ln 10 * \log E$$

de plus

$$d \ln E = \frac{dE}{E}$$

donc

$$d \log E = \frac{d \ln E}{\ln 10} = \frac{dE}{E} * \ln 10$$

ce qui traduit le fait qu'à énergie donnée, la largeur de l'intervalle en énergie  $d \log E$  est plus petit que  $d \ln E$ , lui même plus petit que  $dE$ .

Si on appelle  $dn$  le nombre de neutrons d'énergies comprises dans l'intervalle considéré : on obtient les relations entre distributions de neutrons :

$$\frac{dn}{d \log E} = \frac{dn}{d \ln E} * \ln 10 = \frac{dn}{dE} * (E * \ln 10)$$

résumons :

Flux par unité d'énergie	->	Flux par unités isoléthargiques	->	Flux par décade (ou par intervalle léthargique $\ln 10$ )
$\frac{dn}{dE}$	$*(E)$	$\frac{dn}{d \ln E}$	$*(\ln 10)$	$\frac{dn}{d \log E}$

# Bibliographie

- [1] SFP Grenoble. Comptes-rendus du Séminaire Daniel Dautreppe, (Octobre 2000).
- [2] Journées de l'Energie au Palais de la découverte, (2001). [http ://www.palais-decouverte.fr/conf/conf.htm#actes](http://www.palais-decouverte.fr/conf/conf.htm#actes).
- [3] Ecoles Energie et Recherche, (2004). [http ://eer.in2p3.fr/](http://eer.in2p3.fr/).
- [4] L'énergie sous toutes ses formes : données, contraintes, enjeux, (2001). [http ://e2phy.in2p3.fr/2001/e2phy\\_2001.html](http://e2phy.in2p3.fr/2001/e2phy_2001.html).
- [5] J.L. Bobin, H. Nifenecker, C. Stephan. *L'énergie dans le monde : bilan et perspectives*. EDP Sciences, (2001).
- [6] Ch. Ngo. *L'énergie : Ressources, technologies et environnement*. Dunod 2e edition, (2004).
- [7] J.L. Bobin, E. Huffer et H. Nifenecker. *L'énergie de demain Techniques - Environnement - Economie*. Grenoble Sciences EDP Sciences, (2005).
- [8] [http ://www.recherche.gouv.fr/mstp/energie\\_mstp\\_200401.pdf](http://www.recherche.gouv.fr/mstp/energie_mstp_200401.pdf).
- [9] B. Tamain. *L'énergie : un problème majeur pour demain*, (Avril 2005). Présentation dans le cadre de l'AMP.
- [10] International Institute for Applied Systems. *Global Energy Perspectives*, (1998). Cambridge University Press.
- [11] [http ://www.ipcc.ch/](http://www.ipcc.ch/).
- [12] R.Ducroux, P.Jean-Baptiste. *L'effet de serre Réalité, conséquences et solutions*. CNRS Editions, (2004).
- [13] Evelyne Bertel et Gilbert Naudet. *L'économie de l'énergie nucléaire*. Génie Atomique, (2004).
- [14] S.David. Future Scenarios for Fission Based Reactors. *Nuclear Physics A*, 751 :429–441, (2005).
- [15] Journal Officiel. Loi n° 91-1381 du 30/12/1991 relative aux recherches sur la gestion des déchets radioactifs.

- [16] Ch. Bataille et C. Birraux. Avancement et perspectives de recherche sur la gestion des déchets radioactifs, (Mars 2005). <http://www.assemblee-nationale.fr/documents/index-oecst.asp#F84>.
- [17] A. Nuttin. *Potentialités du concept de réacteur à sels fondus pour une production durable d'énergie nucléaire basée sur le cycle thorium en spectre épithermique*, (2002). Thèse université Grenoble.
- [18] G. Fioni, M. Cribier, F. Marie, M. Aubert, S. Ayrault, T. Bolognese, J. -M. Cavedon, F. Chartier, O. Deruelle, F. Doneddu et al. Incineration of  $^{241}\text{Am}$  induced by thermal neutrons. *Nuclear Physics A*, 693 Issues 3-4 :546–564, (October, 2001).
- [19] M. Petit, M. Aiche, G. Barreau, S. Boyer, N. Carjan, S. Czajkowski, D. Dassie', C. Grosjean, A. Guiral, B. Haas et al. *Determination of the  $^{233}\text{Pa}(n, f)$  reaction cross section from 0.5 to 10 MeV neutron energy using the transfer reaction  $^{232}\text{Th}(^3\text{He}, p)^{234}\text{Pa}$* . *Nuclear Physics A*, 735 Issues 3-4 :345–371, (May, 2004).
- [20] E. Segrè. *Nuclei and particles*. Benjamin, (1965).
- [21] H. Tellier. *Réactions nucléaires induites par les neutrons*. INSTN , (1989).
- [22] A. M. Lane, R. G. Thomas. R-matrix theory of nuclear reactions. *Rev. Mod. Phys.*, 30(2) :257–353, (1958).
- [23] <http://www-nds.iaea.org/>.
- [24] <http://www.nea.fr/html/dbdata/>.
- [25] <http://www.nndc.bnl.gov/>.
- [26] <http://www.ippe.obninsk.ru/podr/cjd/>.
- [27] <http://www.nea.fr/janis/welcome.html>.
- [28] <http://www-nds.iaea.org/exfor/exfor10.htm>.
- [29] <http://www-nds.iaea.org/exfor/endlf00.htm>.
- [30] <http://www-nds.iaea.org/exfor/cinda.htm>.
- [31] A. Bidaud, T. Ivanova, V. Mastrangelo, I. Kodeli. *Sensitivity and uncertainty study for thermal molten salt reactors*. In *International Workshop on Nuclear Data Needs for Generation IV Nuclear Energy Systems*, Antwerp, Belgium, (April 5-7, 2005).
- [32] The NEA High priority Request List. Status in May 1998, OECD-NEA Nuclear Science Committee.
- [33] A. Yu. Konobeyev, T. Fukahori and O. Iwamoto. *Neutron and Proton Nuclear Data Evaluation for U-235 and U-238 at Energies up to 250 MeV*, (December 2002). (JAERI-Research 2002-028).

- [34] *Update to nuclear data standards for nuclear measurements*, (1997). INDC(NDS)-368.
- [35] K.Merla et al. *Absolute measurement of neutron induced fission cross-sections of u-235, u-238, np-237 and pu-239*. In *Conf.on Nucl.Data for Sci.and Technol.*, Juelich, (1991).
- [36] A. D. Carlson. *Measurements of the U235(n,f) standard neutron cross section for neutron energies from 3 to 30 MeV*. In *Proc. Spec. Meeting on Neutron Cross Section Report on Standards for the Energy Region above 20 MeV*, Uppsala, Sweden, (1991). Report NEANDC-305.
- [37] P.W. Lisowski. *Fission cross section ratios for 233,234,236 U relative to U235 from 0.5 to 400 MeV*. In *Proc. Spec. Meeting on Neutron Cross Section Report on Standards for the Energy Region above 20 MeV*, Uppsala, Sweden, (1991). NEANDC-305.
- [38] *Summary Report of the First Research Co-ordination Meeting on Improvement of the Standard Cross Sections for Light Elements*, (January 2002). INDC(NDS)-438.
- [39] O. Shcherbakov, A. Donets, A. Evdokimov, A. Fomichev, T. Fukahori, A. Hasegawa, A. Laptev, V. Maslov, G. Petrov, S. Soloviev, Yu. Tuboltsev, A. Vorobyev. *Neutron-Induced Fission of 233U, 238U, 232Th, 239Pu, 237Np, natPb and 209Bi Relative to 235U in the Energy Range 1-200 MeV*. In *Proceedings of International Conference on Nuclear Data for Science and Technology (ND 2001)*, Tsukuba, Japan, (October 7-12, 2001). Published as Journal of Nuclear Science and Technology, Supplement 2, August 2002.
- [40] R. Nolte, M.S. Allie, P.J. Binns, F.D. Brooks, A. Buffler, V. Dangendorf, K. Langen, J.-P. Meulders, W.D. Newhauser, F. Roos, H. Schuhmacher. *Measurement of 235U, 238U, 209Bi and natPb Fission Cross Sections using Quasi-monoenergetic Neutrons with Energies from 30 MeV to 150 MeV*. In *Proceedings of International Conference on Nuclear Data for Science and Technology (ND 2001)*, Tsukuba, Japan, (October 7-12, 2001). Published as Journal of Nuclear Science and Technology, Supplement 2, August 2002.
- [41] A.A. Fomichev et al. *Neutron-Induced Fission Cross-Section of U235 at Energies of 20-200 MeV*. In *Proceedings of the International Workshop on Nuclear Data for the Transmutation of Nuclear Waste*, GSI-Darmstadt, (September 1-5, 2003). Poster session.
- [42] G. Winkler et al. *The 238U(n,f) cross section and its ratio to the 27Al(n, $\alpha$ )24Na and 56Fe(n,p)56Mn*. In *Conf.on Nucl.Data for Sci.and Technol.*, Juelich, (1991).
- [43] V. P. Eismont et al. *Relative and absolute neutron-induced fission cross sections of 208Pb, 209Bi, and 238U in the intermediate energy region*. *Phys. Rev. C*, 53 :2911–2918, (1996).
- [44] V. P. Eismont et al. *Up to date status and problems of the experimental nucleon-induced fission cross section data base at intermediate energies*. In *Proc. 3rd International Confe-*

- rence on Accelerator Driven Transmutation Technologies and Applications, Czech Republic, (June 7 - 11, 1999).
- [45] Allan D. Carlson. *Status of the Database for The New International Evaluation of The Neutron Cross Section Standards*, (November 4, 2003). CSEWG meeting Brookhaven National Laboratory.
  - [46] H. Jin, M. Cavaoli, V. Hajdas, A. V. Prokofiev, A. N. Smirnov and L. Tommasino. Bismuth-fission detectors for high energy nucleons : II. Proton and neutron responses. *Radiation Measurements*, 31, Issues 1-6 :459–462, (2005). Proceedings of the 19th International Conference on Nuclear Tracks in Solids, Besancon, France, 31 August - 4 September 1998.
  - [47] A. V. Prokofiev, S. G. Mashnik, A. J. Sierk. Cascade-Exciton Model Analysis of Nucleon-Induced Fission Cross Sections of Lead and Bismuth at 45- to 500-MeV Energies. *Nuclear Science and Engineering*, 131 :78–95, (January, 1999).
  - [48] P.Staples et al. *Bull. Am. Phys. Soc.*, 40 :962, (1995).
  - [49] I.V. Ryzhov, G.A. Tutin, V.P. Eismont, A. Mitryukhin, V. Oplavin, S. Soloviev, H. Conde', N. Olsson, P.-U. Renberg. *Measurements of Neutron-Induced Fission Cross Sections of Pb and Bi at Intermediate Energies* . In *Proceedings of International Conference on Nuclear Data for Science and Technology (ND 2001)*, Tsukuba, Japan, (October 7-12, 2001). Published as Journal of Nuclear Science and Technology, Supplement 2, August 2002.
  - [50] A. Prokofiev. *Nucleon-Induced Fission Cross Sections of Heavy Nuclei in the Intermediate Energy Region*, (2001). Thèse Uppsala University.
  - [51] n\_TOF Collaboration. *TOF06 : Measurements of fission cross sections for the isotopes relevant to the thorium fuel cycle*, (2001). CERN-INTC-2001-025 INTC/P145.
  - [52] V.M. Maslov. *Pairing effects in  $^{232}\text{Th}$  neutron-induced fission cross section*. *Nuclear Physics A*, 743, Issue 4 :236–255, (November, 2004).
  - [53] C. Wagemans, J. Wagemans, O. Serot. *The  $^{234}\text{U}(n, f)$  Cross Section Revisited*. *Nuclear Science and Engineering*, 141 :171–173, (June 2002).
  - [54] C. Rubbia. *ADS and waste management - now and in 2010*, (March 22-23, 2005). International Symposium on Neutrons in Basic Science and Nuclear Technologies n\_BANT.
  - [55] *Properties of Neutron Sources*. In Okamoto, editor, *Proceedings of an Advisory Group Meeting on Properties of Neutron Sources*, IAEA Meeting Leningrad, Russia (9 - 13 June 1986), (1987). IAEA-TECDOC-410 .

- [56] NEANDC Working Group on Intense Neutron Sources for Neutron Physics and Nuclear Data Measurements. In *Summary Report*, Germany, (September, 1990). S. Cierjacks. NEA/NEANDC(1990)274/U.
- [57] <http://irmm.jrc.be>.
- [58] P.E. Koehler. *Comparison of white neutron sources for nuclear astrophysics experiments using very small samples. Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res. A*, 460 :352–361, (2001).
- [59] The TARC collaboration. *The TARC experiment (PS211) : neutron driven nuclear transmutation by adiabatic resonance crossing*, (December 15, 1999). CERN 99-11.
- [60] C. Rubbia et al. *A High Resolution Spallation driven Facility at the CERN-PS to measure Neutron Cross Section in the interval from 1 eV to 250 MeV*, (May 30, 1998). CERN-LHC-98-02 (EET).
- [61] C. Rubbia et al. *A High Resolution Spallation driven Facility at the CERN-PS to measure Neutron Cross Section in the interval from 1 eV to 250 MeV : a relative performance assessment*, (June 15, 1998). CERN-LHC-98-02 (EET)-Add.1.
- [62] n\_TOF Collaboration. *European collaboration for high-resolution measurements of neutron cross sections between 1 eV and 250 MeV*, (1999). CERN-SPSC-99-8 SPSC/P310.
- [63] n\_TOF Collaboration. *Determination of the neutron fluence, the beam characteristics and the backgrounds at the CERN-PS TOF Facility*, (2000). CERN-INTC-2000-016 INTC/P123.
- [64] n\_TOF Collaboration. *The s-process thermometer  $^{151}\text{Sm}$  and the importance of  $^{22}\text{Ne}(\alpha, n)^{25}\text{Mg}$  as s-process neutron source*, (February, 2000). CERN-INTC-2000-017 INTC/P124.
- [65] n\_TOF Collaboration. *Neutron capture cross sections of Zr and La : probing neutron exposure and neutron flux in red giant stars*, (September, 2002). CERN-INTC-2002-034 INTC/P163.
- [66] n\_TOF Collaboration. *The Re/Os clock revisited*, (November, 2000). CERN-INTC-2000-040 INTC/P125.
- [67] n\_TOF Collaboration. *Measurements of neutron capture cross sections of  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{231}\text{Pa}$ ,  $^{234}\text{U}$  and  $^{236}\text{U}$* , (2002). CERN-INTC-2002-013 INTC/P154.
- [68] n\_TOF Collaboration. *Measurements of neutron capture cross sections of  $^{233}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{240,242}\text{Pu}$ ,  $^{241,243}\text{Am}$  and  $^{245}\text{Cm}$  with a Total Absorption Calorimeter at n\_TOF*, (2003). CERN-INTC-2003-036 INTC/P182.
- [69] n\_TOF Collaboration. *Measurements of fission cross sections of actinides*, (April, 2003). CERN-INTC-2003-021 INTC/P177.



- 
- [70] R.Cappi, M.Giovannozzi, G.Métral. *The proton beams for the time of flight neutron facility at the CERN-PS*. In *Proceedings of 7th European Particle Accelerator Conference*, Vienna, Austria, (June, 2000 ). CERN-PS/2000-009.
- [71] A. Ferrari and P.R. Sala. *Intermediate and High Energy Physics Models in FLUKA : Improvements, Benchmarks and Applications*. In *Proc. of Int. Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, NDST-97*, ICTP, Miramare-Trieste, Italy, (May 19-24 1997).
- [72] Y. Kadi et al. *The EA-MC Monte Carlo Code Package*. In *Proc. Of the 5th Meeting on Shielding Aspects of Accelerators, Targets and Irradiation Facilities (SATIF5)*, Paris, (18-21 July 2000).
- [73] C. Borcea et al. *Results from the commissioning of the n\_TOF spallation neutron source at CERN*. *Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res. A*, 513 :524–537, (5 June 2003).
- [74] C. Coceva, M. Magnani, A. Mengoni and M. Frisoni. *A study of the relative merit of various target and moderator sizes*, (March, 2000). n\_TOF Monte Carlo working group note.
- [75] n\_TOF Collaboration. *n\_TOF Technical Design Report*, (February, 2000). CERN-INTC-2000-004.
- [76] n\_TOF Collaboration. *CERN n\_TOF Facility : Performance Report*, (January, 2003). CERN-INTC-2002-037 CERN-SL-2002-053-ECT.
- [77] n\_TOF Collaboration. *n\_TOF Technical Report*, (2000). CERN-INTC-2000-018.
- [78] <http://pceet075.cern.ch/>.
- [79] D. Cano Ott et al. *First parameterisation of the neutron source at the n\_TOF and its influence on the collimation system*, (2000). DFN/TR-03/II-00.
- [80] D. Cano Ott et al. *Proposal for a Two-step Cylindrical Collimator System for the n\_TOF Facility*, (2000). DFN/TR-04/II-00.
- [81] D. Cano Ott et al. *Design of a Collimator for the Neutron Time of Flight (n\_TOF) Facility at CERN by Means of FLUKA/MCNP4b Monte Carlo simulation*, (1999). DFN/TR-07/II-99.
- [82] C. Coceva, M. Frisoni, M. Magnani and A. Mengoni. *On the figure of merit in neutron time-of-flight measurements*. *Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res. A*, 489 :346–356, (4 april 2002).
- [83] G. Lorusso, N. Colonna, S. Marrone, G. Tagliente, M. Heil, D. Cano-Ott, M. Mosconi, C. Moreau, A. Mengoni, U. Abbondanno et al. *Time-energy relation of the n\_TOF neutron beam : energy standards revisited*. *Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res. A*, 532, Issue 3 :622–630, (21 October 2004).

- [84] V.Vlachoudis et al. *Monte Carlo simulation of the Neutron Time of Flight facility at CERN*. In *Proceedings MC-2000*, page 1175, Lisbonne, (2000).
- [85] A. Ferrari, P.R. Sala. *Background rates in the Muon system : recent results and the effect of the Tungsten plug*, (Sep., 1995). ATL-MUON-95-090.
- [86] C. Coceva, M. Magnani, A. Mengoni and M. Frisoni. *Neutron flux and resolution function*, (June, 2000). n\_TOF Monte Carlo working group note.
- [87] n\_TOF Collaboration. *Status Report*, (August, 2001). CERN-INTC-2001-021.
- [88] P. M. Milazzo, G. Aerts, E. Berthoumieux, N. Bustreo, D. Cano-Ott, P. Cennini, N. Colonna, C. Domingo, M. Embid, L. Ferrant et al. *Measurements of neutron capture cross-sections for ADS-related studies*. *Nucl. Inst. and Meth.PR B*, 213 :36–41, (January 2004).
- [89] G. Aerts. *Mesure de la section efficace de capture neutronique du  $^{232}\text{Th}$  à n\_TOF au CERN*, (Septembre 2005). Thèse université Paris Sud Orsay.
- [90] W. Dridi. , (en préparation). Thèse université Paris Sud Orsay.
- [91] L.Tassan-Got and the n\_TOF Collaboration. *Experimental activities at CERN n\_TOF*. In *Workshop on nuclear data for science and technology : accelerator driven waste incineration*, Trieste, Italie, (September 10-21, 2001).
- [92] S. Marrone, P. F. Mastinu, U. Abbondanno, R. Baccomi, E. Boscolo Marchi, N. Bustreo, N. Colonna, F. Gramegna, M. Loriggiola, S. Marigo et al. *A low background neutron flux monitor for the n\_TOF facility at CERN*. *Nucl. Inst. and Meth.PR A*, 517 :389–398, (2004).
- [93] J. Pancin and the n\_TOF Collaboration. *Measurement of the n\_TOF beam profile with a micromegas detector*. *Nucl. Inst. and Meth.PR A*, 524 :102–114, (2004).
- [94] n\_TOF Collaboration. *A detailed study of hyperdeformed states of uranium in the  $^{234}\text{U}(n,f)$  reaction*, (April, 2002). CERN-INTC-2002-022 INTC/P145 Add.1.
- [95] n\_TOF Collaboration. *n\_TOF neutron flux determination*, (2002). n\_TOF Internal note.
- [96] V. Lacoste et al. *Neutron flux measured by activation of gold foils during the commissioning of the n\_TOF facility*, (2001). SL/EET-Int. Note 004-2001.
- [97] J. Pancin. *Détection de neutrons avec un détecteur de type micromégas : de la physique nucléaire à l'imagerie*, (juin 2004). Thèse université Bordeaux I.
- [98] N.M.Larson. *Updated User's guide for SAMMY : Multilevel R-Matrix Fits to Neutron Data Using Bayes'Equation*, ORNL/TM-9179, Martin Marietta Energy System, Inc., Oak Ridge National Laboratory - 5th revision No. ORNL/TM-9179/R6. (Juillet, 2003).

- [99] F. Gunsing. *Proposal for an analytical resolution function in SAMMY*, (October, 2001). SAMMY User's group meeting.
- [100] A. Ferrari, C. Rubbia, V. Vlachoudis. *A comprehensive study of the n\_TOF Background*, (February, 2002). SL-Note-2001-036-EET.
- [101] n\_TOF Collaboration. *Study of the Background in the Measuring Station at the n\_TOF Facility at CERN : Sources and Solutions*, (December, 2001). CERN-INTC-2001-038.
- [102] F. Gunsing. *The spins of resonances in reactions of neutrons with  $^{238}\text{U}$  and  $^{113}\text{Cd}$* , (1995). Thèse.
- [103] C. Coceva, R. Simonini, D.K. Olsen. *Calculation of the ORELA neutron moderator spectrum and resolution function*. *Nucl. Inst. and Meth.*, 211 :459, (1983).
- [104] P.E. Koehler. *A determination of the energy resolution at LANSCE*. *Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res. A*, 350, Issue 3 :511–516, (November, 1994).
- [105] C.Stephane. *Experimental Techniques in Nuclear Physics*, chapter *Gas Filled Detectors*, pages 11 – 57. W de G, (1997).
- [106] A.Breskin,R.Chechick and N.Zwang. *Properties of very low pressure multiwire proportional chambers*. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, NS 27, n° 1, February, 1980.
- [107] H. Stelzer. *A large area parallel plate avalanche counter*. *Nucl. Instr. and Meth.*, 133 :409–413, (1976).
- [108] D. v. Harrach and H. J. Specht. *A square meter position sensitive parallel plate detector for heavy ions*. *Nucl. Inst. and Meth.*, 164 :405–628, (1979).
- [109] J.W.Keuffel. *Parallel-Plate Counters*. *Rev. Sci. Instr.*, 20 :202, (1949).
- [110] R.W.Pidd and L.Madansky. *Some Properties of the Parallel Plate Spark Counter I*. *Phys. Rev*, 75, number 8 :1175–1180, (1949).
- [111] J.Christiansen. *Zeitschrift Angew. Phys.*, 4 :326, (1952).
- [112] A.Breskin and N.Zwang. *Timing Properties of Parallel Plate Avalanche Counters with light particles*. *Nucl. Inst. and Meth.*, 144 :609 – 611, (1977).
- [113] G. F. Knoll. *Radiation detection and measurement*. Wiley and Sons , New York, USA, (1979).
- [114] R. Burgei. *Une chambre à plaques parallèles à avalanches pour la localisation d'ions lourds relativistes*, (26 octobre 1989). Thèse université Paris Sud Orsay.
- [115] W. R. Graves, C. Heil and M. Urban. *A parallel plate avalanche counter to detect minimum ionizing particles*. *Nucl. Inst. and Meth.*, 176 :229–232, (1980).

- [116] A.Breskin and N.Zwang. *A simple and accurate method for bidimensional position read-out of parallel plate avalanche counters*. *Nucl. Inst. and Meth.*, 146 :461–463, (1977).
- [117] M. Birk, A. Breskin and N. Trautner. *A simple efficient method of delay-line termination and timing-signals extraction in position-sensitive proportional counters*. *Nucl. Inst. and Meth.*, 137 :393–395, (1976).
- [118] C. Lenaour. *Note interne IPNO Groupe Radiochimie*, (2001).
- [119] C. Wagemans. *Necessity of alternative methods to determine thickness and masses*. *Nucl. Inst. and Meth.PR A*, 282 :4–9, (1989).
- [120] S. Pierre. Mesures d'épaisseurs de cibles d'actinides du cycle du thorium, (en préparation). Mémoire du CNAM.
- [121] R.Plug and the n\_TOF Collaboration. *The data acquisition system of the neutron time-of-flight facility n\_TOF at CERN*. *Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res. A*, 538 :692–702, (11 February 2005).
- [122] E. Schaefer et al. *The Raw Data Format of the n\_TOF experiment at CERN*, (2001). n\_TOF Internal note.
- [123] <http://cern.ch/castor>.
- [124] <http://batch.web.cern.ch/batch/>.
- [125] D. Cano Ott et al. *The n\_TOF Raw Data Processing and the Fast Data Analysis*, (2001). n\_TOF Internal note.
- [126] C.Stéphan, L.Ferrant, B.Berthier, S.David, L.Tassan-Got, C.O Bacri, F.Rejmund, C.Moreau and the n\_TOF Collaboration. *Neutron Induced Fission Cross Section Measurements between eV and 250 MeV*. In *Proceedings of International Conference on Nuclear Data for Science and Technology (ND 2001)*, Tsukuba, Japan, (October 7-12, 2001). Published as Journal of Nuclear Science and Technology, Supplement 2, August 2002.
- [127] L.Ferrant. *Fission measurements with PPAC for TOF06*. In *17th n\_TOF Collaboration Meeting*, Lisbonn, (Decembre, 2002).
- [128] L. Tassan Got. *Pulse shape analysis routine for PPAC detector in (n,f) cross section measurements*, (2001). Internal note.
- [129] <http://root.cern.ch/root/>.
- [130] S. Isaev. *Measurements of fission cross sections with PPAC detectors*, (2004). Internal note.
- [131] C. Paradela. *Mesures de section efficace de fission de  $^{234}\text{U}$  avec les PPACs à n\_TOF*, (2005). Thèse université Santiago de Compostella.

- 
- [132] L. Tassan Got. Communication privée.
- [133] Brolley et al. *Angular Distribution of Fragments from Neutron-Induced Fission*. *Phys. Rev.*, 94 :640, (1954).
- [134] F. Vives et al. *Investigation of the fission fragment properties of the reaction  $^{238}\text{U}(n,f)$  at incident neutron energies up to 5.8 MeV*. *Nucl. Phys. A*, 662 :63, (2000).
- [135] J. E. Simmons et al. *Angular Distribution of Fragments in Fission Induced by MeV Neutrons*. *Phys. Rev*, 120 :198, (1960).
- [136] R. B. Leachman and L. Blumberg. *Fragment Anisotropies in Neutron-, Deuteron-, and Alpha-Particle-Induced Fission*. *Phys. Rev.*, 137 :B814, (1964).
- [137] Tutin et al. *An ionization chambre with Frisch grids for studies of high-energy neutron induced fission*. *NIM A*, 457 :646, (2001).
- [138] H. Derrien et al. *Evaluation of  $^{237}\text{Np}$  neutron cross-sections in the energy range from  $10^{-5}$  eV to 14 MeV*. INDC(Fr) - 42/L.